

SERIE A, N°

N° D'ORDRE :

537

THÈSE

A.O. 3225

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

le grade de Docteur ès-Sciences Physiques

PAR

Wladyslaw De WIECLAWIK

Contribution à l'étude de la charge des atomes de recul
après émission alpha.

Soutenue le 8 / 7 / 1969 devant la Commission d'examen.

Melle Y. CAUCHOIS

Président.

Mme N. MARTY
MM. J. TEILLAC
N. PERRIN

} *Examineurs.*

SERIE A, N°
N° D'ORDRE :

THÈSE

A.O. 3225

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

le grade de Docteur ès-Sciences Physiques

PAR

Wladyslaw De WIECLAWIK

Contribution à l'étude de la charge des atomes de recul
après émission alpha.

Soutenue le 8 / 7 / 1969 devant la Commission d'examen.

Melle Y. CAUCHOIS

Président.

Mme N. MARTY
MM. J. TEILLAC
N. PERRIN

} *Examineurs.*



Ce travail a été effectué au Laboratoire Joliot Curie d'Orsay.

Je remercie Monsieur le Professeur Jean TEILLAC qui a bien voulu m'accueillir à l'Institut de Physique Nucléaire et a toujours suivi mes expériences avec intérêt et bienveillance.

Ce travail m'a été proposé par Monsieur Nils PERRIN, Maître de Recherches, sous la direction et avec l'aide constante duquel il a pu être mené à bonne fin. Je tiens à lui exprimer ici toute ma gratitude.

J'exprime ma reconnaissance à Messieurs Manuel VALADARES et Robert J. WALEN, Directeurs de Recherches au Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse, qui m'ont fait bénéficier spontanément de leurs réalisations et dont les conseils m'ont été très précieux.

Je remercie Monsieur Michel LEBLANC, technicien du Laboratoire, qui a été pour moi un collaborateur efficace dans le domaine de l'électronique.

Je remercie Madame Geneviève BASTIN-SCOFFIER, Messieurs Bertrand ADER, Pierre PARIS, José SANT'ANA Dionisio, Chin-Fan LEANG, David-BOYER, Monsieur et Madame ARIANER, ainsi que tous ceux qui, à des titres divers, m'ont aidé au cours de ce travail.

Ma reconnaissance va à tout le personnel de l'Institut, qui, de l'Atelier de Mécanique.... au Service de Documentation, m'a toujours facilité la tâche avec beaucoup de camaraderie.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550222_0005

TABLE DES MATIERES

Pages

INTRODUCTION

Première partie :

METHODES ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES

I-1 : Introduction	1
I-2 : Conditions de vol	3
I-3 : Pouvoir de résolution	11
I-4 : Préparation des sources	16
I-5 : Mesure du temps de vol	19
I-6 : Effet de focalisation	22
I-7 : Effets de surface et de pression	26

Deuxième partie :

DONNEES ACTUELLES SUR L'IONISATION INTERNE ET LA REORGANISATION DU CORTEGE

II-1 : Ionisation interne en émission α et β	30
II-2 : Cascades de lacunes	36

Troisième partie :

APPAREILLAGE ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

III-1 : Montage expérimental	40
III-2 : Spectres de temps de vol	45
III-3 : Dépôt actif du thoron	48
III-4 : Thorium 227	53
III-5 : Américium 241	59
III-6 : Radium 223	63

CONCLUSION

BIBLIOGRAPHIE

INTRODUCTION

Bien que l'interdépendance des phénomènes atomiques et nucléaires ait été soulignée dès le début de l'étude de la radioactivité, ce n'est que depuis une quinzaine d'années que vient de se développer la spectrométrie de charge. C'est qu'en effet, si les caractéristiques quantiques des électrons du cortège sont très sensibles aux désintégrations du noyau, aucune propriété nucléaire spécifique n'est mise en jeu lorsque, réciproquement, c'est le cortège qui est bouleversé. Par ailleurs, la spectrométrie de charge fait appel à des expériences qui exigent un heureux concours de circonstances. Ainsi, pour nous, elles n'ont été rendues possibles que grâce à l'avènement des détecteurs solides et des analyseurs multiparamétriques et, aussi, grâce à la collaboration du C.S.N.S.M. qui nous a préparé les trois quarts de nos sources.

Cependant, il devient de plus en plus évident que pour interpréter complètement certaines expériences de Physique Nucléaire - expériences de corrélations angulaires dans le vide, en particulier - il est nécessaire d'avoir des données très précises sur les transitions électroniques qui interviennent dans le cortège immédiatement après ($< 10^{-9}$ s) une désintégration nucléaire; une corrélation α - γ , par exemple, peut être en effet perturbée par suite de l'interaction entre le noyau et la couche électronique du cortège affectée par de telles transitions.

Parmi les nombreux arguments qui militent en faveur de la spectrométrie de charge, on peut citer les suivants :

- elle est sensible à la nature de la "variation nucléaire" qui est à l'origine de l'ionisation du cortège;
- elle fournit le bilan statistique du réarrangement complexe que déclenche toute perte d'électrons dans l'une quelconque des couches du cortège; elle permet donc de tester les processus mis en jeu au cours du réarrangement, pour une ionisation initiale donnée, ou, inversement, de tester la distribution initiale des lacunes primaires, lorsque les processus de réarrangement sont connus;
- elle est un complément de la spectrométrie classique des électrons de basse énergie et permet, dans certains cas, de déterminer le coefficient de conversion interne pour des couches externes du cortège;
- elle permet d'étudier des propriétés moléculaires ou des effets de surface, en utilisant des atomes parents liés, dont on a par avance déterminé les caractéristiques de charge lorsqu'ils étaient libres;
- elle donne des renseignements précieux à tous ceux qui s'intéressent à l'électronique des milieux gazeux, aux collisions atomiques, aux dégâts par rayonnements, aux raies X et satellites, aux détecteurs de rayonnements ou de particules chargées...

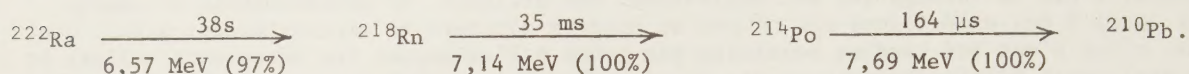
C'est surtout à Oak Ridge que s'est développé la spectrométrie de charge, d'abord avec PLEASANTON et SNELL {Pl. 57, S55, S57, S58 et Sn 55-59}, puis avec CARLSON et KRAUSE {C 63-66, Ca 62-68, Hu 66, Kr 64-67}. Ces chercheurs ont utilisé plusieurs appareils {Sn 65} donnant de bonnes caractéristiques de résolution et de précision; ils ont étudié essentiellement des sources gazeuses; les ions étaient formés, soit par radioactivité (β , C.E. ou isométrie γ), soit par irradiation X externe. Nous développerons leurs principaux résultats dans la deuxième partie de ce travail.

Très peu de résultats existent en spectrométrie de charge des émetteurs α , bien que les premières expériences remontent à 1910 {Ma 10, Ru 10, Wa 15, We 15, Mu 31, McG 32, Jo 34}. Ce n'est que tout récemment que trois nouvelles expériences ont été tentées : par SZUCS et DELFOSSE à Louvain {Sz 65}, CANO et DRESSSEL à New Mexico {Can 65} et enfin, par GUNTER, ASARO et HELMHOLZ à Berkeley {Gu 66 et 68}.

SZUCS et DELFOSSE {Sz 65} ont utilisé un appareil proche de celui de SNELL et al; ils ont étudié la distribution de charges des atomes de recul ^{216}Po , extraits d'une

source gazeuse de ^{220}Rn et détectés, après déflection électrostatique, en coïncidence avec les α de 6,287 MeV. L'absence de structure fine dans ^{216}Po donne un spectre de charge relativement simple : -1, 0, 1, 2, 3 ..., essentiellement neutre (plus de 80%).

GUNTER {Gu 68} a utilisé un spectrographe α , de grande résolution, pour l'étude des atomes de recul ^{222}Ra , émis dans la désintégration α de ^{226}Th (30,5 minutes). La détection de ces atomes, sur la plaque photographique, repose sur la présence, dans l'émulsion, d'étoiles à deux ou trois branches α , formées au cours de la désintégration de ^{222}Ra et de ses descendants :



L'un des principaux intérêts de cette expérience réside en l'existence d'une structure fine dans le spectre α de ^{226}Th : 76% des α arrivant au fondamental et 22% peuplant le niveau à 111,2 keV de ^{222}Ra ; dans ces conditions, outre une distribution de charges peu élevées (centrée sur 1), il existe une distribution quasi gaussienne, centrée aux environs de 12 et comprenant toutes les charges de 4 à 20 (fig. 30).

CANO et DRESSEL {Can 65} ont étudié deux sources, dont une de ^{241}Am . Leurs résultats soulignent surtout l'importance de la préparation des sources; nous y reviendrons dans la section III-5.

Nous avons voulu, pour notre part, apporter une contribution à la spectrométrie de charge des atomes de recul après émission α . Nous l'avons fait en utilisant une méthode de temps de vol que nous décrirons et discuterons dans la première partie de ce travail. Nous avons choisi cette méthode, car, tout en présentant l'avantage, par rapport aux méthodes basées sur l'analyse magnétique, de donner, au cours d'une même expérience, un spectre complet de charge, elle est en même temps une méthode de coïncidences; ce qui nous a permis de déterminer la charge des atomes de recul en fonction de l'énergie des particules α et de démontrer qu'il existe une relation de cause à effet entre distribution de charges et schéma de niveaux.

P R E M I E R E P A R T I E

- -
o

METHODES ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES

I-1 : INTRODUCTION

PRINCIPE DE LA METHODE :

L'appareil que nous avons réalisé est schématiquement constitué par un long tube droit (fig. 1), vide d'air, aux extrémités duquel sont placés deux détecteurs de part et d'autre d'une source émettrice de particules α et d'atomes de recul. Deux grilles G_1 et G_2 , à la masse, définissent dans ce tube une base de vol pour les atomes de recul.

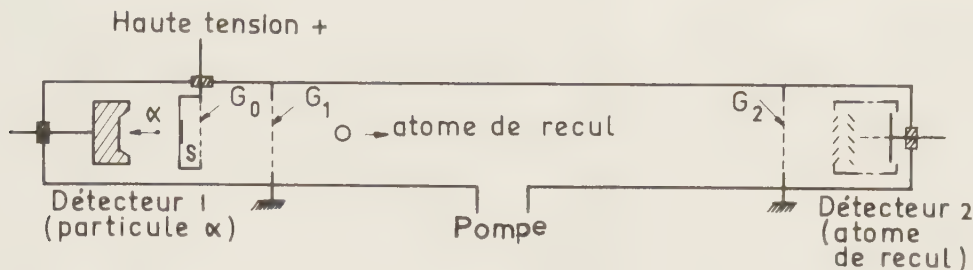


Figure 1

En principe, lorsqu'une particule α est émise par la source, dans l'axe du tube, vers le détecteur (1), un atome de recul se dirige, dans le sens opposé, vers le détecteur (2). Pour une énergie donnée des particules α , tous les atomes de recul se meuvent à la même vitesse, mais ne transportent pas la même charge.

- S'il n'existe aucun champ entre la source et la grille G_1 , seule la vitesse de recul intervient dans le temps de vol et tous les atomes mettent le même temps pour atteindre le détecteur (2); le spectre de temps de vol est alors un spectre de vitesse.

- Si l'on établit une d.d.p. négative entre la source et la grille G_1 , les atomes de recul sont accélérés et franchissent G_1 avec des vitesses v_n d'autant plus grandes que leur charge positive n est plus élevée; leur temps de transit t_n entre les grilles G_1 et G_2 , à la vitesse v_n , devient une fonction de leur charge et la mesure de t_n permet de déterminer n ; le spectre de temps de vol devient ainsi un spectre de charge.

Pour obtenir un spectre de temps de vol, nous utilisons la méthode classique de conversion temps-amplitude. L'analyse d'une distribution de vitesse ou d'une distribution de charge revient donc, finalement, à enregistrer le nombre d'impulsions délivrées par un convertisseur temps-amplitude, en fonction de l'amplitude de ces impulsions.

CONDITIONS EXPERIMENTALES REELLES :

D'après ce qui vient d'être exposé, si l'on introduisait dans la voie α un retard constant, égal au temps de vol des atomes de recul d'une charge donnée, pour une énergie α donnée, la courbe représentant la distribution des temps de vol de ces atomes serait celle correspondant à la distribution des retards entre deux événements instantanés, enregistrés par deux détecteurs différents. On sait que cette courbe peut être assimilée à une gaussienne, caractérisée par sa largeur à mi-hauteur ($2\tau_0$); sa largeur est fonction principalement des fluctuations au niveau des détecteurs et aussi - mais à un degré moindre - des fluctuations dues à l'électronique associée; on a couramment $2\tau_0 < 2.10^{-8}s$.

En fait, dans le cas de notre appareillage, les raies obtenues (fig. 2) sont beaucoup plus larges que $2\tau_0$ et ne sont pas gaussiennes; les temps de vol sont nettement déplacés du côté des temps longs. Cet étalement des temps de vol, spécifique de notre méthode, est dû à plusieurs causes :

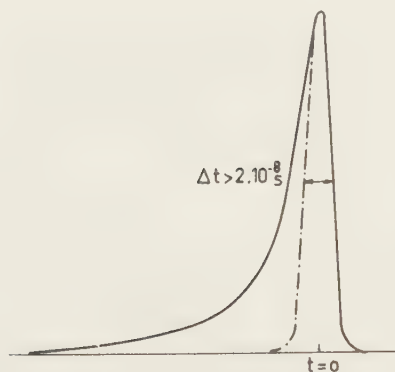


Figure 2

1/ - Les atomes de recul ne sont pas tous émis à la surface de la source; ceux qui sont émis en profondeur perdent de l'énergie en traversant une partie de la source. La vitesse initiale des atomes de recul varie donc d'un atome à l'autre depuis une valeur maximum (vitesse de recul) jusqu'à zéro.

2/ - Les atomes de recul ne sont pas tous émis, ni ne volent, suivant l'axe du tube de vol; les dimensions de la source et celles de la dynode d'entrée du multiplicateur n'excluent pas des trajectoires obliques qui peuvent donc introduire des fluctuations dans le temps de vol. Cette cause de dispersion subsisterait même dans le cas idéal d'une source ponctuelle et sans épaisseur.

3/ - On pourrait tenir compte également des fluctuations de la tension accélératrice, de l'effet de focalisation des atomes chargés, par le champ accélérateur, de l'effet de recul lors de la conversion interne qui suit la désintégration α ... mais ces effets sont négligeables par rapport à ceux qui ont pour origine l'épaisseur de la source.

Il faut remarquer aussi que la distribution de charge que nous déduisons d'une distribution de temps de vol, c'est, en fait, celle des atomes de recul lorsqu'ils ont atteint le détecteur (2), mais ce n'est peut-être pas leur distribution de charge primaire; divers effets peuvent la modifier, soit au niveau de la source, soit pendant le vol.

Pour étudier chacun de ces problèmes plus en détail, nous examinerons successivement :

- Les conditions de vol
- Le pouvoir de résolution
- La préparation des sources
- La mesure du temps de vol
- L'effet de focalisation
- Les effets de surface et de pression.

I-2 : C O N D I T I O N S D E V O L

Avant d'aborder le problème du temps de vol total dans l'appareil, pour un atome de recul quelconque, en fonction de ses paramètres cinématiques réels, il est utile de résoudre un certain nombre de problèmes simples, pour un atome de recul "idéal", qui volerait suivant l'axe du tube de vol, avec une vitesse initiale égale à celle du recul. Ces problèmes concernent, soit la vitesse de cet atome à divers stades du vol, en fonction de sa masse, de sa charge et des divers champs qu'il peut rencontrer, soit le temps de vol qui en résulte, en fonction des dimensions géométriques de l'appareil.

VITESSE DE REcul :

Toute désintégration nucléaire a lieu avec conservation du moment cinétique. L'émission, par le noyau parent, d'une particule α de masse m et de vitesse $\vec{v}_\alpha$, implique donc que le noyau résiduel, de masse M , possède une vitesse $\vec{v}_r$, telle que :

$$M\vec{v}_r + m\vec{v}_\alpha = 0. \quad (1)$$

On en déduit que le noyau résiduel "recule" avec une énergie cinétique :

$$E_r = \frac{4}{A} E_\alpha \quad (2)$$

où E_α est l'énergie emportée par la particule α et A le nombre de masse du noyau de recul. Comme A est aussi, pratiquement, le nombre de masse de l'atome de recul, les mêmes équations 1 et 2 s'appliquent aux atomes.

L'équation 2 permet d'exprimer la vitesse de recul, soit en fonction de E_α :

$$v_r = \frac{277,8}{A} E_\alpha^{1/2} \quad (3)$$

où E_α est en MeV; soit en fonction de E_r :

$$v_r = 4,4 \left(\frac{E_r}{A} \right)^{1/2} \quad (4)$$

où E_r est en keV; dans les deux cas, v_r est donné en 10^7 cm/s.

VITESSE A LA SORTIE DU CHAMP ACCELERATEUR :

L'accélération $\vec{\gamma}$ que reçoit une particule ionisée de masse M , dans un champ électrostatique $\vec{E}$ uniforme, est directement proportionnelle au produit qV de sa charge q par la d.d.p. V entre les grilles G_0 et G_1 qui délimitent l'espace où règne le champ $\vec{E}$. En effet, on a, dans la direction du champ, qui est ici celle de l'axe du tube de vol :

$$F = q\vec{E} = \frac{qV}{a} = M\vec{\gamma} \quad (5)$$

où a est la distance entre les grilles G_0 et G_1 .

Si donc nous considérons un atome de recul "idéal", sa vitesse à la sortie du champ accélérateur sera définie par l'une des relations équivalentes :

$$v^2 = 2\gamma a + v_r^2 \quad (6a)$$

$$= \frac{2}{M} qV + v_r^2 \quad (6b)$$

$$= \frac{2e}{\mu} \cdot \frac{1}{A} nV + v_r^2 \quad (6c)$$

où e désigne la charge élémentaire, n le nombre de charges transportées par l'atome et μ l'unité de masse atomique. En exprimant V en kV , on obtient v^2 en $(10^7 \text{ cm/s})^2$:

$$v^2 = 19,3 \frac{nV}{A} + v_r^2 \quad (7)$$

C'est avec cette vitesse v que l'atome de recul "idéal" parcourt la majeure partie de son trajet dans le tube de vol; plus de 95% dans les cas usuels.

VITESSE D'IMPACT SUR LA DYNODE D'ENTREE DU MULTIPLICATEUR :

En franchissant la grille G_2 , avec la vitesse v , l'atome de recul "idéal" pénètre dans la région du multiplicateur; il est alors soumis à la tension accélératrice U (tension d'alimentation du multiplicateur); il atteint la dynode d'entrée avec la vitesse u , définie par une relation analogue à (7) :

$$u^2 = 19,3 \frac{nU}{A} + v^2 \quad (8)$$

TEMPS DE VOL DE L'ATOME DE REcul "IDEAL" :

Supposons que la source soit dans le plan de la grille G_0 ; appelons successivement a , L et d les distances, entre la source et G_1 , entre les grilles G_1 et G_2 , et entre G_2 et la dynode d'entrée du multiplicateur.

Le temps de vol sur la distance L est immédiat :

$$T_L = \frac{L}{v} \quad (9)$$

car cette distance est parcourue à la vitesse constante v . Quant aux temps de vol dans les deux régions où l'atome est accéléré, ils sont respectivement définis par :

$$T_a = \frac{1}{\gamma_a} (v - v_r) \quad (10)$$

$$T_d = \frac{1}{\gamma_d} (u - v) \quad (11)$$

avec : $\gamma_a a = 9,65 \frac{nv}{A}$ (12)

$\gamma_d d = 9,65 \frac{nU}{A}$ (13)

Le temps de vol total de l'atome de recul "idéel" est la somme :

$T = T_a + T_L + T_d$ (14)

Les figures 3 et 4 donnent un exemple de variation de T , pour des atomes $^{208}\text{Tl}^{n+}$, dans le cas d'une base de vol de 111,3 cm; les distances a et d valent respectivement 12 mm et 10 mm. Sur la figure 3, T varie en fonction de la charge n , pour diverses valeurs de V ; sur la figure 4, T varie en fonction de V , pour diverses valeurs de n . L'observation de ces figures conduit aux remarques suivantes :

1/ - Les deux familles de courbes sont presque identiques pour $n > 2$; donc, l'effet de la tension U est négligeable et le temps de vol T_d modifie très peu le temps de vol total T ;

2/ - L'écart entre les temps de vol de deux charges adjacentes n et $n+1$ diminue lorsque n augmente; par suite, lorsqu'on parcourt le spectre de charge dans le sens des temps de vol décroissants, donc des charges croissantes, les pics adjacents deviennent de moins en moins séparés.

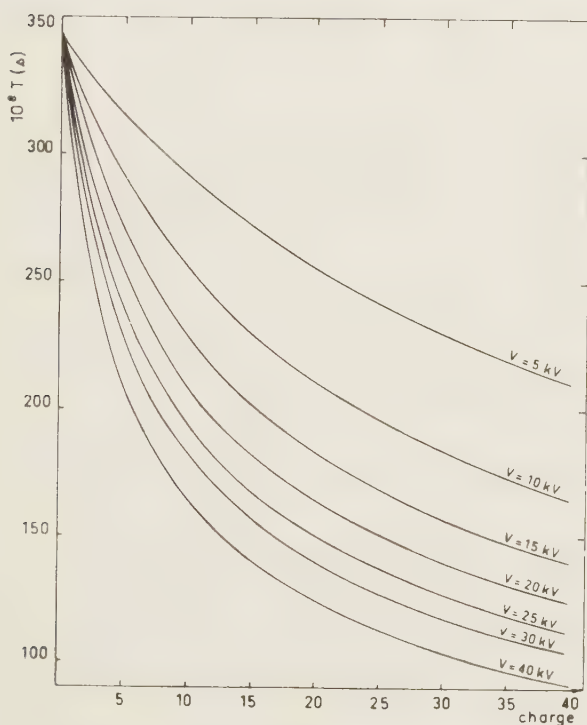


Fig. 3 : Temps de vol en fonction de la charge.

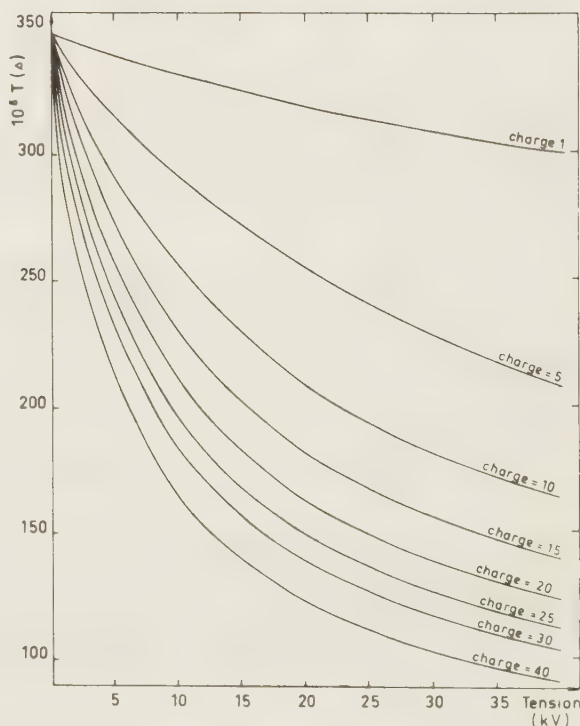


Fig. 4 : Temps de vol en fonction de la tension accélératrice.

3/ - Pour $n > 5$, l'écart entre les temps de vol des atomes de charges n_1 et n_2 ne croît pas nécessairement lorsque l'on augmente la tension accélératrice.

TEMPS DE VOL DANS LE CAS GENERAL :

Considérons un atome de recul qui quitte la source avec une vitesse initiale $v_0 < v_r$ et qui vole dans la direction de l'axe du tube de vol; soit $E_0 < E_r$ son énergie cinétique. Plaçons-le dans les conditions de vol précisées sur la fig. 5.

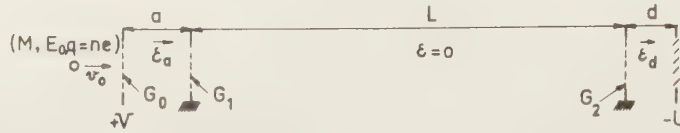


Fig. 5 : Condition de vol.

Dans la région d'accélération règne un champ électrique uniforme $\vec{E}_a$, parallèle à l'axe du tube. L'atome de recul est donc soumis à l'accélération constante :

$$\vec{\gamma}_a = \frac{q}{M} \vec{E}_a \quad (15)$$

et il atteint la grille G_1 avec la vitesse :

$$v_1 = t_a \gamma_a + v_0 ; \quad (16)$$

$$\text{d'où :} \quad t_a = \frac{(2M)^{1/2}}{q E_a} (E_1^{1/2} - E_0^{1/2}) \quad (17)$$

en désignant par E_1 l'énergie cinétique de l'atome à l'abscisse de la grille G_1 :

$$E_1 = E_0 + qa E_a \quad (18)$$

Dans le tube droit, entre les grilles G_1 et G_2 , l'énergie cinétique de l'atome reste constante (E_1), d'où :

$$t_L = \left(\frac{M}{2}\right)^{1/2} (E_1)^{-1/2} L \quad (19)$$

Dans la région du détecteur, que l'atome de recul aborde avec l'énergie cinétique E_1 , il est soumis à l'accélération constante :

$$\vec{\gamma}_d = \frac{q}{M} \vec{E}_d \quad (20)$$

son temps de vol y est donc :

$$t_d = \frac{(2M)^{1/2}}{q \mathcal{E}_d} (E^{1/2} - E_1^{1/2}) \quad (21)$$

en appelant E l'énergie cinétique de l'atome au moment où il frappe la dynode d'entrée, du multiplicateur :

$$E = E_1 + qd \mathcal{E}_d \quad (22)$$

Des équations 17, 19 et 21, il résulte le temps de vol total :

$$t = (2M)^{1/2} \left[\frac{E_1^{1/2} - E_0^{1/2}}{q \mathcal{E}_a} + \frac{E^{1/2} - E_1^{1/2}}{q \mathcal{E}_d} + \frac{L}{2E_1^{1/2}} \right] \quad (23)$$

dont le calcul pratique peut être réalisé en exprimant les énergies en keV, les champs en kV/cm et les temps en 10^{-8} s; il vient :

$$t = 4,553 A^{1/2} \left[\frac{E_1^{1/2} - E_0^{1/2}}{nV} a + \frac{E^{1/2} - E_1^{1/2}}{nU} d + \frac{L}{2} E_1^{-1/2} \right] \quad (24)$$

Considérons, par exemple, une expérience au cours de laquelle on étudie la charge des atomes de recul $^{223}\text{Ra}^{n+}$; adoptons pour les paramètres géométriques et électriques les valeurs suivantes : $a = 1,2$ cm, $L = 111,3$ cm, $d = 1$ cm, $V = 20$ kV, $U = 3$ kV, $E_0 = E_r = 107$ keV.

Pour $n = 20$, on a :

$$t_a = 2,48 \cdot 10^{-8} \text{ s} \quad t_L = 168,04 \cdot 10^{-8} \text{ s} \quad t_d = 1,47 \cdot 10^{-8} \text{ s} \quad t = 1,72 \text{ } \mu\text{s}$$

et pour $n = 5$, on a :

$$t_a = 3,30 \cdot 10^{-8} \text{ s} \quad t_L = 262,99 \cdot 10^{-8} \text{ s} \quad t_d = 2,32 \cdot 10^{-8} \text{ s} \quad t = 2,69 \text{ } \mu\text{s}$$

La comparaison de ces temps montre que, quelle que soit la charge :

1°) - L'accélération des atomes de recul est faite en un temps très court ($< 2\%$ du temps de vol total) ce qui, dans les conditions de vide que nous avons réalisées, rend extrêmement improbable un changement de charge des atomes de recul entre la source et la grille G_1 ;

2°) - Le temps de vol dans la région du multiplicateur est négligeable devant le temps de vol t_L ($< 1\%$), ce qui a pour effet de rendre négligeable toute variation de charge qui surviendrait entre les grilles G_1 et G_2 , car ce n'est que dans la région du multiplicateur que l'influence de cette variation sur le temps de vol devient sensible.

Nous pouvons donc conclure que la charge n que nous déduisons de l'équa-

tion (24) est bien celle que possèdent les atomes de recul lorsqu'ils quittent la source.

CHOIX DE LA TENSION ACCELERATRICE :

En pratique, la détermination des charges, à partir d'un spectre de temps de vol, est d'autant plus facile et précise que les pics sur ce spectre sont plus séparés les uns des autres. Dans le cas d'une source infiniment fine, on dispose principalement de deux paramètres pour améliorer la résolution : la base de vol L et la tension accélératrice V ; ces mêmes paramètres permettent également d'améliorer la résolution dans le cas d'une source plus ou moins épaisse, mais leur influence est alors beaucoup plus limitée.

Le rôle de L est simple; d'après l'équation (24), le temps de vol est proportionnel à L ; il en est donc de même de l'écart entre les temps de vol pour deux charges n_1 et n_2 . C'est ce qui ressort d'ailleurs du tableau I, aussi bien pour le couple $n_1 = 30, n_2 = 20$, que pour le couple $n_1 = 5, n_2 = 1$.

	Base a+L+d cm Charge	113,5	161,5	253,5
V = 5 kV	n = 1	364,4	518,6	813,8
	n = 5	<u>335,8</u>	<u>477,7</u>	<u>749,8</u>
	$\tau_{1,5}$	28,6	40,9	64,0
	n = 20	268,4	381,8	599,0
	n = 30	<u>241,0</u>	<u>342,8</u>	<u>537,7</u>
	$\tau_{20,30}$	27,4	39,0	61,3
V = 10 kV	n = 1	356,5	507,3	796,3
	n = 5	<u>308,0</u>	<u>438,2</u>	<u>687,7</u>
	$\tau_{1,5}$	48,5	69,1	108,6
	n = 20	220,6	313,8	492,2
	n = 30	<u>191,7</u>	<u>272,7</u>	<u>427,6</u>
	$\tau_{20,30}$	28,9	41,1	64,6
V = 20 kV	n = 1	342,3	487,0	764,4
	n = 5	<u>268,5</u>	<u>381,9</u>	<u>599,2</u>
	$\tau_{1,5}$	73,8	105,1	165,2
	n = 20	171,9	244,4	383,3
	n = 30	<u>145,7</u>	<u>207,1</u>	<u>324,7</u>
	$\tau_{20,30}$	26,2	37,3	58,6

Tableau I : Différence τ_{n_1,n_2} entre les temps de vol de deux atomes dont les charges sont respectivement $n_1 = 1$ et $n_2 = 5$ (ou $n_1 = 20$ et $n_2 = 30$), pour diverses combinaisons Base-Accélération. Unité de temps : $10^{-8}s$.

Ce même tableau I illustre aussi le fait que le rôle de V est plus complexe : son influence est différente suivant qu'il s'agit des charges faibles ou des charges élevées ; alors que pour le couple de charges 1 et 5 l'écart τ augmente avec V , pour le couple de charges 20 et 30 il passe par un maximum aux environs de 10 kV.

Pour déterminer la tension V optimum qui permet d'obtenir l'écart τ maximum entre les temps de vol t_1 et t_2 des atomes de recul de charge n_1 et n_2 (toutes les autres caractéristiques de ces atomes étant par ailleurs supposées identiques), nous pouvons négliger les temps de vol de ces atomes dans les deux régions où règne un champ électrique et ne considérer que le temps de vol sur la distance L (plus de 95% du temps de vol total). On a donc :

$$t(n,V) = k E_1^{-1/2} = k(E_0 + n V)^{-1/2} \quad (25)$$

où k est une constante de l'appareil et de l'émetteur α étudié et V la tension accélératrice à adapter; il en résulte, en supposant $n_1 > n_2$:

$$\tau = t_2 - t_1 = k\{(E_0 + n_2 V)^{-1/2} - (E_0 + n_1 V)^{-1/2}\} \quad (26)$$

Cet écart τ passe par un maximum lorsque sa dérivée par rapport à V s'annule, d'où :

$$n_2(E_0 + n_2 V)^{-3/2} = n_1(E_0 + n_1 V)^{-3/2} \quad (27)$$

On en déduit :

$$V_{\text{opt}} = \frac{\left(\frac{n_1}{n_2}\right)^{2/3} - 1}{n_1 - n_2 \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^{2/3}} E_0 \quad (28)$$

En particulier, pour deux charges adjacentes n et $n+1$, cette relation devient :

$$V_{\text{opt}} = \frac{\left(\frac{n+1}{n}\right)^{2/3} - 1}{\frac{n+1}{n} - \left(\frac{n+1}{n}\right)^{2/3}} \frac{E_0}{n} \quad (29)$$

Nous donnons dans le tableau II les valeurs optima de V qui permettent d'obtenir la meilleure résolution, pour quelques valeurs de n_1 et de n_2 , dans le cas des atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ quittant la source avec l'énergie cinétique $E_0 = E_r = 107 \text{ keV}$.

Charges à séparer $\begin{cases} n_1 \\ n_2 \end{cases}$	$\begin{cases} 2 \\ 1 \end{cases}$	$\begin{cases} 6 \\ 5 \end{cases}$	$\begin{cases} 13 \\ 12 \end{cases}$	$\begin{cases} 26 \\ 25 \end{cases}$	$\begin{cases} 51 \\ 50 \end{cases}$	$\begin{cases} 5 \\ 1 \end{cases}$	$\begin{cases} 30 \\ 20 \end{cases}$
V_{opt} (kV)	152	39	17	8,4	4,3	47,6	8,8

Tableau II : Tension accélératrice optimum.

Lorsque n est supérieur à 10, on peut poser $\frac{n+1}{n} = 1+\epsilon$ dans l'équation 29 et écrire :

$$\left(\frac{n+1}{n}\right)^{2/3} \sim 1 + \frac{2}{3}\epsilon$$

d'où :

$$\boxed{V_{\text{opt}} \approx \frac{2E_0}{n}} \quad (30)$$

Ce dernier résultat peut d'ailleurs être établi directement à partir de l'équation (25). En effet, on a par dérivation par rapport à n :

$$\frac{\Delta t}{\Delta n} = -\frac{1}{2} kV(E_0 + nV)^{-3/2} \quad (31)$$

d'où l'on tire, en faisant $\Delta n = 1$

$$\tau(V) = -\frac{1}{2} kV(E_0 + nV)^{-3/2} \quad (32)$$

fonction dont la dérivée par rapport à V s'écrit :

$$\tau'(V) = -\frac{1}{2} k (E_0 + nV)^{-3/2} + \frac{3}{4} nkV(E_0 + nV)^{-5/2} \quad (33)$$

et s'annule pour :

$$V_{\text{opt}} = \frac{2E_0}{n} .$$

Par suite de diverses causes énumérées dans l'introduction, il y a un étalement des temps de vol des atomes de recul qui quittent une source donnée, à la suite d'une désintégration α d'énergie donnée, même si ces atomes sont dans un même état d'ionisation; ils sont reçus par le détecteur après un temps de vol variable dont la fluctuation ΔT est représentée par la largeur du pic sur la ligne de base (fig. 6). Cet intervalle de temps ΔT est directement proportionnel à la longueur du tube de vol et dépend principalement de l'épaisseur de la source. Dans le cas des expériences que nous avons réalisées, nous avons couramment :

$$\Delta T = 1 \mu s$$

par mètre de vol.

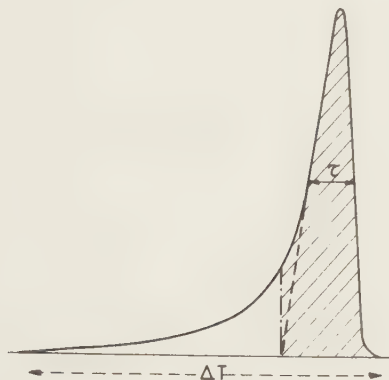


Fig. 6 : Raie type des spectres de temps de vol

Il faut cependant remarquer que, dans le cadre de ces expériences, plus des 2/3 des atomes de recul avaient des temps de vol beaucoup moins dispersés, sur un intervalle de temps 4 à 5 fois plus petit (largeur à la base de la raie hachurée, fig. 6); la grandeur intéressante à considérer n'est donc pas ΔT mais plutôt la largeur à mi-hauteur τ des pics. Aussi, nous avons estimé que deux charges adjacentes n et $n+1$ étaient séparées, si l'écart entre leurs temps de vol était au moins égal au double de la largeur à mi-hauteur du pic correspondant à la charge n (Fig. 7a). En pratique, on

peut même considérer comme séparées, deux charges consécutives, dès que leurs temps de vol diffèrent de τ (fig. 7b).

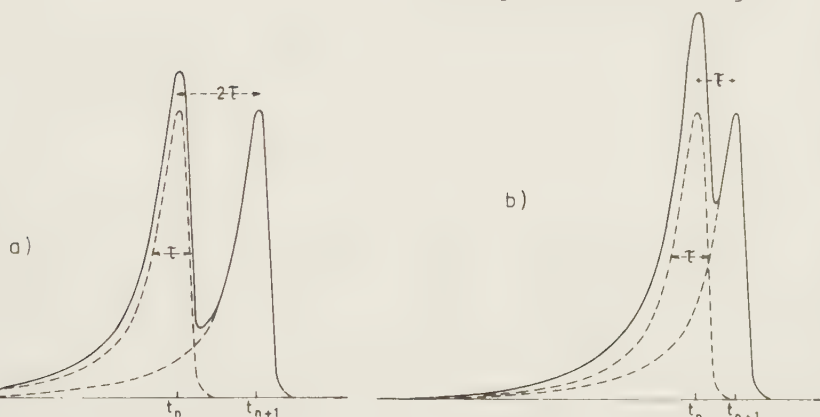


Fig. 7 : Composition de deux pics de même intensité :

$$a) : t_n - t_{n+1} = 2\tau \quad b) : t_n - t_{n+1} = \tau$$

Tout ceci suppose évidemment que le système de conversion temps-amplitude et l'analyseur multicanaux ne limitent pas la résolution ainsi définie et ont une sensibilité suffisante pour que les pics correspondants aux charges les plus élevées soient étalés au moins sur trois canaux:

$$\text{Sensibilité du bloc d'analyse} < \frac{\tau_{\text{minimum}}}{2}$$

LARGEUR A MI-HAUTEUR DES PICS :

Nous allons calculer cette largeur en supposant que les atomes de recul quittent la source avec des vitesses initiales différentes, pouvant prendre toutes les valeurs possibles entre v_r et $v_r \pm \Delta v_r$ où v_r est la vitesse de recul (éq. 3).

L'étalement total du temps de vol qui résulte de cette dispersion des vitesses peut être considéré comme la somme des étalements dans chacune des régions de l'appareil. Mais, vu les petites dimensions adoptées pour la région d'accélération et la région de détection des atomes de recul, l'étalement est pratiquement celui qui intervient dans le tube de vol, entre les deux grilles à la masse G_1 et G_2 .

D'après les équations 19 et 24, le temps de vol dans le tube est donné par l'expression :

$$t_L = \frac{4,553}{2} A^{1/2} L (E_0 + nV)^{-1/2} \tag{34}$$

en la différentiant par rapport à E_0 (énergie à la sortie de la source), on obtient pour la largeur à mi-hauteur des pics :

$$|\Delta t_L| = \frac{4,553}{4} A^{1/2} L (E_0 + nV)^{-3/2} \Delta E_0 \tag{35}$$

Cette expression montre qu'en augmentant la base de vol, pour mieux séparer les charges, on augmente en même temps la largeur à mi-hauteur des pics, ce qui tend à rendre plus ou moins illusoire l'amélioration de la résolution.

Elle montre, d'autre part, que la largeur à mi-hauteur diminue très rapidement lorsque le produit nV croît; ceci était prévisible a priori car, dans le cas où $nV \gg E_0$, la vitesse de vol des atomes de recul est nettement plus grande que la vitesse de recul et devient donc moins sensible aux variations de cette dernière.

Enfin, il est à remarquer, qu'à charge constante, la largeur à mi-hauteur est d'autant plus faible que l'on accélère davantage les atomes de recul. Mais, comme nous l'avons déjà signalé et comme on le verra encore au paragraphe suivant, il est illusoire de trop compter sur cet effet pour améliorer la résolution du côté des charges élevées.

Pour des atomes de recul $^{219}\text{Rn}^{n+}$ résultant de la désintégration α

$\begin{matrix} n \\ V(\text{kv}) \end{matrix}$	0	1	5	10	15	20	30
5 5	16,9	15,6	12	9,2	7,3	6	4,3
10	16,9	14,6	9,2	6	4,3	3,2	2,1
20	16,9	12,8	6	3,2	2,1	1,5	0,9
30	16,9	11,4	4,3	2,1	1,3	0,9	0,55

Tableau III : Largeur à mi-hauteur des pics, calculée. Unité de temps : 10^{-8}s .

du ^{223}Ra , d'énergie $E_\alpha = 5,605 \text{ MeV}$, le tableau III donne, par mètre de vol, la largeur à mi-hauteur Δt_L (exprimée en 10^{-8}s) pour différentes charges et à différentes accélérations, en admettant que la finesse de la source est définie par $\frac{\Delta E_0}{E_0} = 10\%$. A titre de comparaison, la figure 8 représente les variations de la fonction $\frac{k}{(E_0 + nV)^{3/2}}$ pour différentes valeurs de nV .

$\begin{matrix} n \\ V(\text{Kv}) \end{matrix}$	0	1	5	10	15	20	30
5	8,45	7,8	6	4,6	3,65	3	2,15
10	16,9	14,6	9,2	6	4,3	3,2	2,1
20	33,8	25,6	12	6,4	4,2	3	1,8
30	50,7	34,2	13,2	6,3	3,9	2,7	1,65

Tableau IV : Différence $\tau_{n, n+1}$ entre les temps de vol de deux atomes dont les charges diffèrent d'une unité. Unité de temps : 10^{-8}s .

ECARTEMENT DES PICS :

Pour calculer la différence entre les temps de vol de deux atomes de recul - ayant quitté une source donnée après une désintégration α d'énergie donnée - dont les charges sont respectivement n et $n+1$, nous pouvons supposer qu'ils volent tous les deux dans l'axe du tube et qu'ils ont quitté la source avec la même vitesse initiale. D'autre part, nous pouvons négliger leur temps de vol dans le voisinage de la source et du détecteur et limiter notre calcul à la distance, de longueur L , comprise entre les grilles G_1 et G_2 . Le temps de vol est alors simplement défini par l'équation 34 ; en différentiant t_L par rapport à n et en faisant $\Delta n = 1$, on obtient :

$$\tau_{n,n+1} = t_n - t_{n+1} = 1,14 A^{1/2} LV (E_0 + nV)^{-3/2} \tag{36}$$

La présence du terme $(E_0 + nV)^{-3/2}$ indique que le produit nV joue pratiquement le même rôle dans la variation de l'écartement des pics que dans la variation de leur largeur; il en est de même de L . La seule différence entre les expressions 35 et 36 est la présence de V au numérateur de 36; ceci montre que l'écart entre les pics, pour les charges élevées, se détériore moins rapidement que ne s'améliore la largeur à mi-hauteur, lorsque V augmente. Mais le gain de résolution qui devrait en résulter n'est pratiquement jamais atteint et il est préférable d'adopter des conditions expérimentales qui assurent un gain certain dans l'écartement des pics, plutôt qu'un gain hypothétique dans la finesse des raies.

Nous avons rassemblé dans le tableau IV quelques valeurs de l'écart entre deux pics, au voisinage de différentes valeurs de n ;

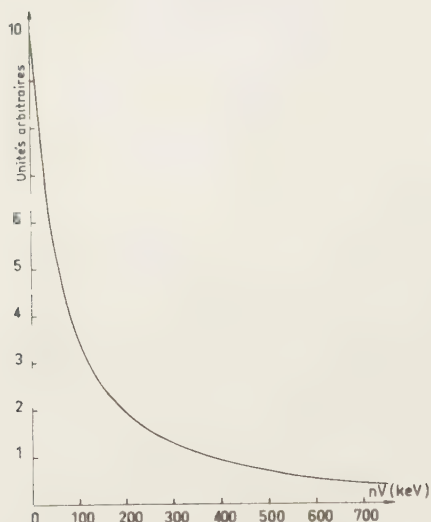


Fig. 8 : Variation de la largeur à mi-hauteur des pics en fonction du gain d'énergie dans le champ accélérateur.

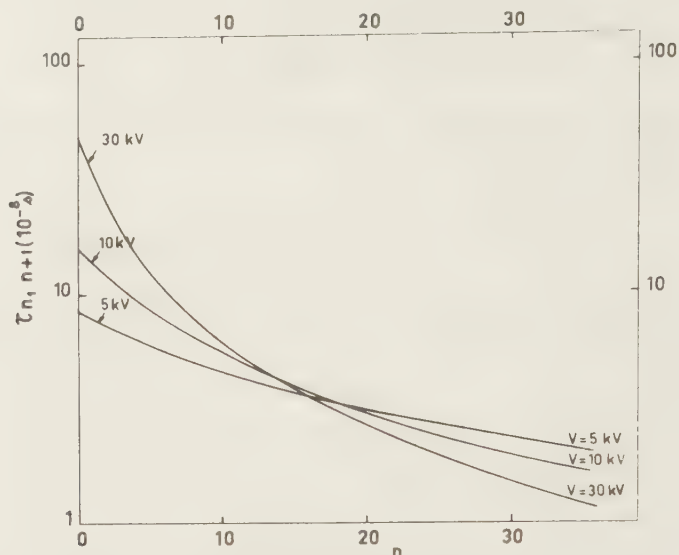


Fig. 9 : Ecartement des pics en fonction de la charge (Base $\sim 1m$)

pour dresser ce tableau, nous avons fait les mêmes hypothèses qu'au paragraphe précédent.

On constate une fois de plus que les raies se resserrent pour les charges supérieures à 13, dès que la tension d'accélération dépasse une dizaine de kV. Ce résultat est encore plus visible sur la figure 9, qui montre les variations de la fonction $\tau_{n,n+1}$ définie par l'équation 36 .

POUVOIR DE RESOLUTION ET FINESSE DES SOURCES :

D'après les résultats des deux paragraphes précédents, on est amené à adopter un compromis entre le gain dans l'écartement des pics et l'affinement des raies. Pour déterminer les conditions expérimentales optimum, on peut se baser sur le fait que la résolution de l'appareil est d'autant plus grande que le rapport :

$$\rho = \frac{\text{écart entre les pics}}{\text{largeur des pics}} = \frac{V \Delta n}{\Delta E_0} \quad (37)$$

déduit des équations 35 et 36, est plus grand.

A première vue, ce rapport semble indépendant de la charge des atomes de recul, mais ce résultat n'est qu'apparent car il concerne précisément des calculs faits au voisinage d'une charge n donnée. Pour le généraliser à tout le spectre de charges, on est conduit à préciser la valeur de V en fonction de n . Nous avons montré dans la section I-2 que la tension accélératrice optimum, à adopter pour une charge n donnée, est définie par la relation :

$$V_{\text{opt}} = \frac{2E_0}{n} .$$

En portant cette valeur de V dans l'expression 37 et en y faisant $\Delta n = 1$, on obtient, au voisinage d'une charge n donnée :

$$\rho_n = \frac{2}{n} \frac{E_0}{\Delta E_0} \quad (38)$$

Ainsi, il apparaît nettement que le pouvoir de résolution de notre appareil est intimement fonction de la finesse des sources.

Pour séparer des charges au voisinage de $n = 20$ et en admettant que la séparation est encore acceptable lorsque $\rho_{20} = 1$, on voit qu'il faut une source dans laquelle la perte relative d'énergie cinétique au moment du recul soit :

$$\frac{\Delta E_0}{E_0} = 10\%$$

C'est donc une épaisseur limite à ne pas dépasser si l'on veut qu'une source donnée soit exploitable par notre méthode et permette une bonne séparation des charges, au moins jusqu'à la charge 20.

CHARGE DE RESOLUTION :

Appelons "charge de résolution" de notre appareil la charge n_R , pour laquelle l'écart des temps de vol des atomes de recul de charge n et $n+1$, défini par l'équation 36, est juste égal à la largeur à mi-hauteur, définie par l'équation 35; c'est le cas illustré par la figure 7 b ; cela revient à faire $\rho_n = 1$ dans l'équation 38 . Cette équation donne alors :

$$n_R = 2 \frac{E_0}{\Delta E_0} \quad (39)$$

Il est facile d'en déduire la charge la plus élevée que l'on peut espérer séparer par notre méthode, en fonction de la dispersion en énergie due à l'épaisseur de la source étudiée.

$\frac{\Delta E_0}{E_0}$	100%	50%	10%	5%
n_R	2	4	20	40

Tableau V : Charge de résolution.

I-4 : P R E P A R A T I O N D E S S O U R C E S

La méthode de temps de vol que nous avons adoptée exige un grand soin dans la préparation des sources; il est en effet essentiel que les particules α traversent le support-source avec le minimum de perte d'énergie ($\frac{\Delta E}{E} < 1\%$) et que les atomes de recul quittent la source avec le moins de diffusion et de ralentissement possible ($\frac{\Delta E_r}{E_r} < 5\%$). La

première de ces exigences est imposée par la nécessité d'avoir une bonne résolution en énergie, pour réaliser des spectres de charge en coïncidence sur des particules α d'énergie donnée. Quant à la deuxième, elle est fondamentalement liée au pouvoir de résolution (section I-2).

Pour satisfaire à ces deux impératifs, nous avons utilisé divers matériaux comme support-source et essayé diverses techniques de dépôt.

SUPPORTS-SOURCES :

Trois types de supports nous ont rendu de grands services, bien qu'à des titres divers : polystyrène, alumine et mica.

- Polystyrène : Il est assez aisé d'obtenir des feuilles minces de 50 à 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, à partir d'une solution chloroformique de polystyrène, plus ou moins diluée suivant l'épaisseur désirée. Ces feuilles peuvent être facilement métallisées par évaporation d'or ou d'aluminium, sous vide. Elles sont relativement fragiles aux petits chocs et légers courants d'air, si leur épaisseur est supérieure à 20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, mais deviennent très fragiles dès que l'on atteint 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ et cassent presque inmanquablement, soit au cours de l'activation, soit surtout après, au cours des diverses opérations de mise en place dans le porte-source ou dans la chambre à vide.

- Mica : A partir de feuilles de mica blanc (muscovite, $\text{K}_2\text{O} \cdot 3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) achetées dans le commerce, larges (10 x 20 cm^2) et plus ou moins épaisses, il est possible - si l'on a beaucoup de patience et de doigté - de détacher par clivage, à l'aide de deux bostons en forme de coupe-papier, de fines feuilles de 100 à 50 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. Lorsque l'opération réussit, la feuille mince apparaît entre les deux bostons; elle est facilement repérable par sa belle couleur d'interférence.

Nous avons été amenés à préparer des feuilles de mica parce que, une fois obtenues et fixées dans leur monture, elles sont beaucoup plus résistantes que les feuilles de polystyrène ou autres films organiques; elles peuvent donc recevoir des dépôts radioactifs de longue période, sans que l'on ait à craindre, qu'à la longue, au cours des multiples opérations manuelles auxquelles la source est soumise, la feuille ne se pulvérise et que les débris radioactifs ne viennent contaminer soit la chambre à vide, soit les alentours de notre appareillage. D'autre part, les feuilles de polystyrène sont impraticables pour y déposer une source par volatilisation dans le vide, car le dégagement de chaleur du creuset suffit souvent à détruire la feuille; le mica, par contre, supporte très bien cette opération.

- Alumine : Nous avons essayé ce type de support parce qu'il possède pratiquement toutes les qualités qui nous ont fait choisir le mica et qu'il est beaucoup plus facile à obtenir sous forme de feuilles de grande surface ($> 4 \text{ cm}^2$). Par ailleurs, on peut doser à volonté l'épaisseur des feuilles, alors qu'avec le mica le résultat n'est jamais prévisible à l'avance.

Dans la préparation des feuilles d'alumine, nous avons bénéficié de la grande expérience acquise dans ce domaine par M.B. ARIANER et R.J. WALLEN du C.S.N.S.M. d'Orsay. Une

technique très au point, améliorant celle utilisée à Heidelberg par U. HAUSER et W. KERLER {Ha 58}, et un appareillage spécialement adapté, permettent d'obtenir des feuilles d'alumine de plus de 10 cm² de surface, parfaitement homogènes; leur épaisseur est réglable par le choix de la tension sous laquelle est faite l'électrolyse de la solution citrique - 2g de citrate d'ammonium et 1g d'acide citrique dans 100 cm³ d'eau bidistillée - dans laquelle baigne la feuille d'aluminium à oxyder.

MODES DE DÉPÔT :

Nous avons utilisé presque exclusivement deux modes de dépôt : l'activation directe et la volatilisation dans le vide.

L'activation directe a consisté à placer un support métallisé, sous tension négative, dans une atmosphère d'argon et de thoron; la poudre active servant d'émanateur étant alors constituée de Rd Th, le support recueille non seulement du ThB, mais aussi les autres descendants du Rd Th.

La volatilisation dans le vide a consisté à placer le support à quelques mm d'un creuset en Pt ou en tantale - contenant l'isotope radioactif à déposer - et à porter ce creuset à une température telle que seul le produit radioactif désiré se volatilise, à l'exclusion de tout autre produit et vienne se fixer sur le support. En général, on fait un préchauffage de purification du creuset à quelques centaines de degrés, pour éviter de collecter sur le support des impuretés organiques ou des corps plus volatils que la source.

Nous avons préparé des sources de ThB par les deux méthodes; les résultats ont été sensiblement analogues. On peut toutefois estimer, à priori, que dans le cas de ThB, les sources préparées par volatilisation devraient être plus fines que celles préparées par activation directe, car au cours de cette dernière, il se dépose du ThA sur le support, ce qui conduit à du ThB plus ou moins profondément enfoncé dans le support, par suite de l'effet de recul lors de la désintégration α du ThA ($T_{1/2} = 0,16s$). Par contre, dans le cas d'autres isotopes, l'activation directe, lorsqu'elle est possible, devrait permettre d'améliorer la finesse des sources, car elle permet de doser beaucoup plus facilement l'activité déposée, ce qui n'est pas toujours facile dans le cas de la volatilisation. Cependant, dans chacun de ces modes de dépôt, il existe un grand nombre de paramètres dont le rôle est plus ou moins bien connu. Ainsi, K.C.K. GUNTER montre, dans sa thèse {Gu 68} que la finesse des sources, préparées par activation directe, dépend d'une douzaine de variables dont certaines sont classiques, comme le temps de collection, le matériau sur lequel on collecte, les traitements mécaniques thermiques ou autres que l'on a fait subir à ce matériau, le milieu gazeux que les atomes de recul traversent pour atteindre le collecteur, l'intensité du champ électrique, la distance entre la source mère et le collecteur; alors que d'autres, qui paraissent tout aussi importantes, sont souvent ignorées : intensité de la source mère, pourcentage de vapeur d'eau dans le milieu gazeux à travers lequel se fait la collection, présence de diverses impuretés dans ce milieu (pourcentage d'oxygène par exemple dans l'Argon ou l'He), géométrie des électrodes et leurs dimensions, pression à laquelle se fait la collection (en sorte, par exemple, que la distance entre les électrodes soit égale au parcours moyen des atomes de recul dans le gaz rarefié traversé), ajustement du champ électrique à la valeur minimum qui permet une collection totale.

Il est donc difficile de prédire, à priori, qu'une source préparée par activation directe sera plus fine qu'une autre préparée par volatilisation. Ce qui est certain, c'est que les sources préparées par dépôt d'une goutte, à partir d'une solution contenant le produit radioactif, sont inexploitablement par notre méthode. Deux telles sources nous ont été soigneusement préparées, l'une d'²⁴¹Am, l'autre de ²⁴³Cm; dans les deux cas, le nombre d'atomes de recul qui parvient jusqu'au multiplicateur est très faible et leur spectre de temps de vol est très étendu, sans pics bien définis et très différent du spectre calculé.

FINESSE DES SOURCES :

La finesse d'une source et celle de son support a été définie, au début de

cette section, en fonction de la perte d'énergie des atomes de recul et des particules α . En adoptant ce point de vue, nous pouvons caractériser les diverses sources que nous avons étudiées, par la dispersion en énergie des atomes de recul qu'elles émettaient :

$$\Delta E_r \sim 5 \text{ keV à } 10 \text{ keV,}$$

et les divers supports que nous avons utilisés, par l'absorption spécifique des particules α qui les traversaient :

$$\Delta E_\alpha \sim 1 \text{ keV}/\mu\text{g}/\text{cm}^2$$

Mais nous pouvons aussi définir la finesse d'une source à partir de paramètres plus directement liés à notre méthode.

Pour tester la finesse de nos sources, nous analysions les atomes de recul qu'elles émettaient, sans soumettre ces atomes, avant leur accès dans le tube de vol, à l'action d'un champ accélérateur : spectres "sans accélération". Nous obtenions ainsi des spectres de temps de vol, d'atomes de recul ayant volé avec leur vitesse initiale sur presque tout leur parcours et n'ayant été accélérés que dans la région du multiplicateur. Cette dernière accélération, inhérente à notre mode de détection, introduit un certain étalement des temps de vol; le spectre ainsi obtenu n'est donc pas, à proprement parler, le spectre de vitesse des atomes de recul au niveau de la source. Mais il en diffère très peu, surtout lorsque la grille G_2 (à la masse) est placée très près de la première dynode du multiplicateur et que celui-ci est alimenté sous une tension totale relativement faible (1500 à 2000 V).

Dans nos expériences, l'étalement des temps de vol, dû au champ électrique dans la région du multiplicateur, était couramment 10 à 20 fois plus faible que l'étalement dû à l'épaisseur de la source; il était en effet inférieur à 10 ns par mètre de vol, alors que la largeur à mi-hauteur du spectre "sans accélération" était presque toujours d'environ 100 ns par mètre de vol.

Cette largeur à mi-hauteur, de 100 ns ou moins, des spectres "sans accélération", par mètre de vol, est caractéristique des "bonnes" sources. Elle correspond à un étalement des vitesses de recul dans la source d'environ 3%, c'est-à-dire à un étalement de 6% des énergies que possèdent les atomes de recul en quittant la source.

On peut également définir une "bonne" source à partir de la forme du spectre de temps de vol "sans accélération". Ce spectre se présente en effet comme la juxtaposition d'une raie gaussienne et d'une queue (fig. 10). Lorsque la source est "bonne", on constate que la surface de la queue est inférieure à la moitié de la surface de la raie. Par contre, lorsque la surface de la queue est égale ou supérieure à celle de la raie, la source donne de médiocres résultats.

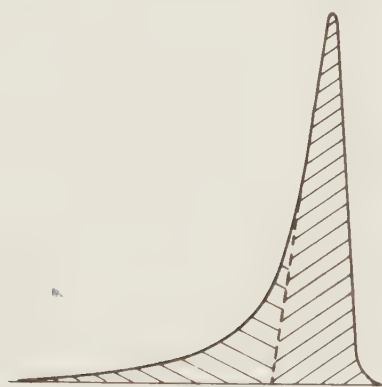


Fig. 10 : Raie caractéristique d'une "bonne" source.

Tout ceci n'a de signification, évidemment, qu'au moment où l'on teste la source. Il ne faut pas oublier en effet qu'une couche active, même très fine, pénètre toujours, à la longue, en profondeur dans son support {Ba 61}. Par suite, toute source "vieillit" et sa finesse se détériore rapidement en quelques semaines ou même en quelques jours. Ce "vieillissement" est accéléré par le contact de la source avec l'atmosphère, contact nécessité par diverses opérations expérimentales. Il faut donc surveiller l'épaississement progressif d'une source fine, en enregistrant de temps à autre un spectre "sans accélération".

Pour mesurer le temps de vol des atomes de recul, il faut déterminer avec précision (de l'ordre de 10^{-8} s) l'instant où ils quittent la source et l'instant où ils frappent la première dynode du multiplicateur. Le premier de ces instants est celui où a lieu l'émission, par le noyau parent, d'une particule α ; c'est pratiquement l'instant de détection de cette particule α - en effet, le temps que met celle-ci pour parcourir 1 cm dans le vide est d'environ 0,5 ns; or, nous plaçons généralement le détecteur α à quelques cm de la source -; d'ailleurs, on peut toujours, pour une évaluation rigoureuse du temps de vol, tenir compte du temps qui s'écoule entre l'instant où la désintégration a lieu et l'instant où la particule α émise est détectée. Donc, le problème fondamental de la mesure du temps de vol est celui de la détection de la particule α d'une part et de l'atome de recul d'autre part; ces deux détections doivent être réalisées de telle sorte qu'elles fournissent des impulsions dont le temps de montée soit très rapide.

DETECTION DES PARTICULES α :

Nous avons d'abord pensé réaliser la détection des particules α avec un photomultiplicateur associé à un scintillateur; nous aurions pu ainsi définir l'instant de départ des atomes de recul à moins de 10^{-9} s. Mais il s'est avéré suffisant d'utiliser des jonctions au silicium, à barrière de surface. En effet, leur temps de montée est de quelques ns et le signal qu'elles délivrent peut servir, tout à la fois, à définir un temps et une énergie, grâce à une méthode de couplage par transformateur [Wi 64] qui permet de générer dans le secondaire, un signal rapide, sans dégrader la résolution en énergie dans le primaire (fig. 11). Le temps de résolution, dans la voie rapide ainsi réalisée, est inférieur

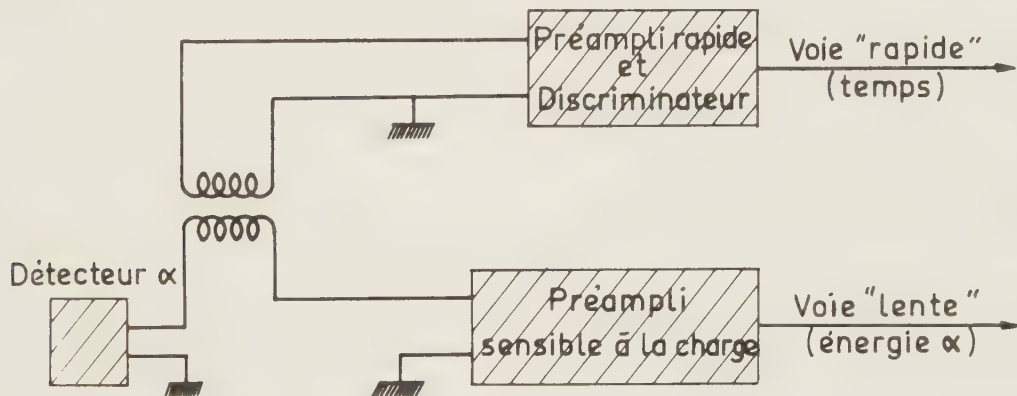


Fig. 11 : Principe du capteur de temps.

à 1 ns, tandis que la largeur à mi-hauteur des raies α n'est pratiquement pas modifiée et reste voisine de 25 keV.

DETECTION DES ATOMES DE REcul :

Comme pour les particules α , nous avons d'abord commencé par détecter les atomes de recul avec un P.M.; les résultats ont été très décevants. Nous avons alors adopté la méthode de la détection directe, par impact des atomes de recul sur la première dynode d'un P.M., sans scintillateur, ni photocathode. On sait qu'un tel impact donne lieu à une émission électronique secondaire qui est la somme d'une émission secondaire potentielle, très faible et presque constante (pour $v < 10^8$ cm/s) [Ha 56] et d'une émission secondaire cinétique, beaucoup plus importante, proportionnelle à la vitesse de la particule incidente. Pour que cette dernière émission ait lieu, il faut que la vitesse de la particule incidente

soit supérieure à une certaine vitesse de seuil v_s ; ceci était largement réalisé dans le cas des atomes de recul bombardant une dynode Be-Cu, car v_s vaut alors $5,5 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$ {Sc 66} alors que la vitesse des atomes neutres est de quelques 10^7 cm/s .

D'après la théorie de PARILIS et KISHINEVSKII {Pa 60}, le coefficient d'émission secondaire cinétique, lorsque la vitesse incidente est supérieure à v_s , est indépendant de la charge de la particule incidente et ne dépend que de la vitesse et des numéros atomiques des atomes incidents et des atomes de la cible. Il en est donc de même du gain du multiplicateur.

Toutefois, dans le cas de notre montage expérimental, le gain du multiplicateur dépend, en fait, indirectement de la charge, puisqu'il dépend de la vitesse des atomes de recul après accélération. Mais ceci ne présente aucun inconvénient et reste sans influence sur la distribution des charges élevées car ce qui nous importe, dans le signal délivré par le multiplicateur, ce n'est pas la hauteur de l'impulsion, mais l'instant où elle apparaît.

Nous pouvons donc considérer que l'efficacité du multiplicateur est indépendante de la charge et qu'elle vaut pratiquement 100% {Ba 54}; quant à la constante de temps du multiplicateur, elle est voisine de 10^{-8} s .

CONVERSION TEMPS-AMPLITUDE :

Les deux détecteurs, dont le principe de fonctionnement vient d'être brièvement présenté, délivrent respectivement deux impulsions A et B. Ces impulsions sont rendues rectangulaires, de largeurs T_A et T_B , et servent à déclencher un circuit de coïncidences. Chaque fois qu'une coïncidence a lieu à l'intérieur du temps T_A , on obtient, après intégration, une impulsion dont la hauteur est proportionnelle au temps de superposition des impulsions A et B.

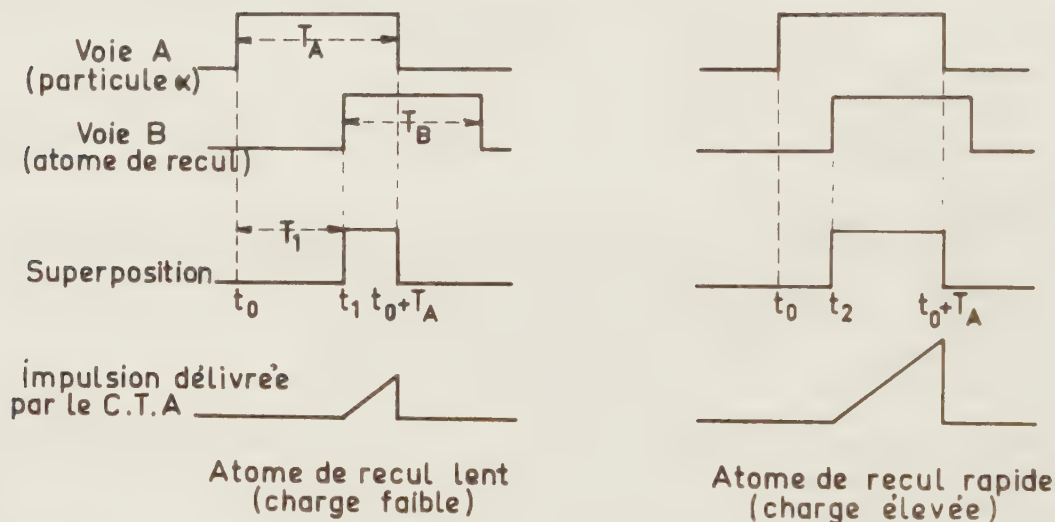


Fig. 12 : Principe de la conversion temps-amplitude.

Soit t_0 l'instant de départ de l'atome de recul - instant repéré par la détection de la particule α dans la voie A - et T le temps de vol de cet atome - temps repéré par l'instant t de son impact sur la première dynode du multiplicateur. Le temps de superposition des deux impulsions A et B est donné par l'expression :

$$(t_0 + T_A) - t = T_A - (t - t_0) = T_A - T \quad (40)$$

On constate qu'il est d'autant plus court que l'atome de recul vole plus lentement. L'impulsion délivrée par le convertisseur temps-amplitude est donc d'autant plus grande que la charge de l'atome de recul est plus élevée; en d'autres termes, lorsque la charge croît, le numéro du canal dans lequel elle est analysée croît également.

Pour que cette méthode de conversion temps-amplitude donne des résultats cohérents, il faut que les largeurs T_A et T_B tiennent compte de l'éventail des temps de vol, des divers atomes de recul, diversement chargés, que l'on désire analyser. En particulier, on doit avoir :

- (1) $T_A > \text{temps de vol de l'atome de recul le plus lent}$
- (2) $T_A - T_B < \text{temps de vol de l'atome de recul le plus rapide.}$

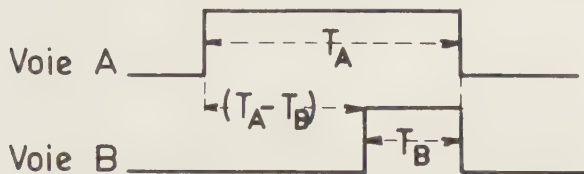


Figure 13

Lorsque la largeur T_B est trop courte - ou celle, T_A , trop longue - la condition (2) peut ne pas être satisfaite. Il apparaît alors dans le spectre des temps de vol un pic de saturation; en effet, pour tous les atomes de recul dont le temps de vol est inférieur à $T_A - T_B$, la superposition des impulsions A et B donne le temps T_B (fig.13); il en résulte une impulsion de sortie de hauteur constante. On peut utiliser cet effet, pour étalonner en temps l'axe qui repère les numéros des canaux.

I-6 : EFFET DE FOCALISATION

Pour accélérer les atomes de recul, nous réalisons des champs électriques, en portant à deux potentiels différents, soit des grilles planes, soit des plaques en forme de disque percées de trous circulaires. En principe, nous avons le choix entre quatre dispositifs simples schématisés sur la fig. 14. En pratique, pour des raisons de taux de comptage, c'est le dispositif (c) qui s'est avéré le plus efficace. Ce dispositif présente toutefois un certain inconvénient du point de vue optique : il conduit à des résultats qui dépendent de façon complexe de la charge, de la tension accélératrice, de la distance a des grilles et de la base de vol; de tels résultats sont difficilement prévisibles en assimilant le dispositif (c) à un champ uniforme, localisé ou non dans une portion réduite de l'espace.

CHAMP UNIFORME EN GENERAL :

Soit un atome de recul qui aborde la région du champ avec une vitesse initiale $\vec{v}_i$, inclinée d'un angle ϕ sur l'axe du tube de vol et qui la quitte avec une vitesse $\vec{v}_f$, inclinée d'un angle θ . L'accélération étant uniquement longitudinale, les composantes transversales des vecteurs $\vec{v}_i$ et $\vec{v}_f$ sont égales :

$$v_i \sin \phi = v_f \sin \theta \quad (41)$$

Connaissant la valeur maximum de θ compatible avec les conditions géométriques de l'appareillage et la variation de v_f/v_i en fonction du gain d'énergie dans le champ accélérateur (produit de la tension accélératrice V par la charge n) on en déduit $\phi_{\max}$. On trouve ainsi que l'angle solide Ω , qui définit la fraction de l'activité de la source détectée par le multiplicateur, augmente régulièrement lorsque la charge croît. La fig. 15 illustre

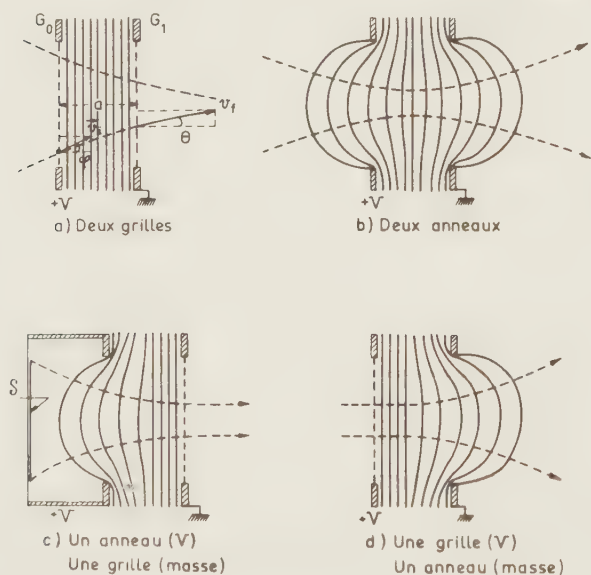


Fig. 14 : Effet de focalisation dans le champ accélérateur.

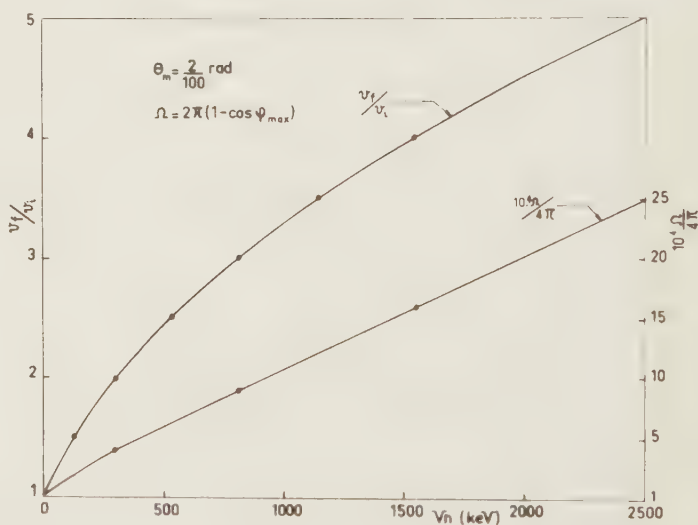


Fig. 15 : Angle d'acceptance en fonction du gain d'énergie dans le champ accélérateur.

cet effet, dans le cas d'une source de ^{223}Ra , placée à 1 mètre du multiplicateur; la variation de Ω est pratiquement linéaire pour $V_n > 200 \text{ keV}$.

CAS PARTICULIER D'UNE LENTILLE MINCE :

D'après les propriétés générales des lentilles électrostatiques, on peut prévoir les trajectoires des atomes de recul, dans le tube de vol, à partir des trajectoires électroniques. Pour tenir compte de la vitesse de recul, il suffit de supposer que les électrons équivalents aux atomes de charge n voient, à l'entrée du champ, un potentiel :

$$V_e = \frac{E_o}{n} ; \quad (42)$$

Le potentiel à la sortie sera donc :

$$V_s = V_e + V \quad (43)$$

Dans la mesure où la portion de l'espace délimitée par les potentiels V_e et V_s est de faible épaisseur, vis-à-vis de la distance focale ($a \ll f$), on peut assimiler cette portion à une lentille électrostatique mince. Sa convergence, dans l'espace du multiplicateur, est alors définie par la relation {02 55}

$$c_2 = \frac{3}{16} \left(\frac{V_e}{V_s} \right)^{1/4} \int_{Z_1}^{Z_2} \left[\frac{\phi'(Z)}{\phi(Z)} \right]^2 dZ \quad (44)$$

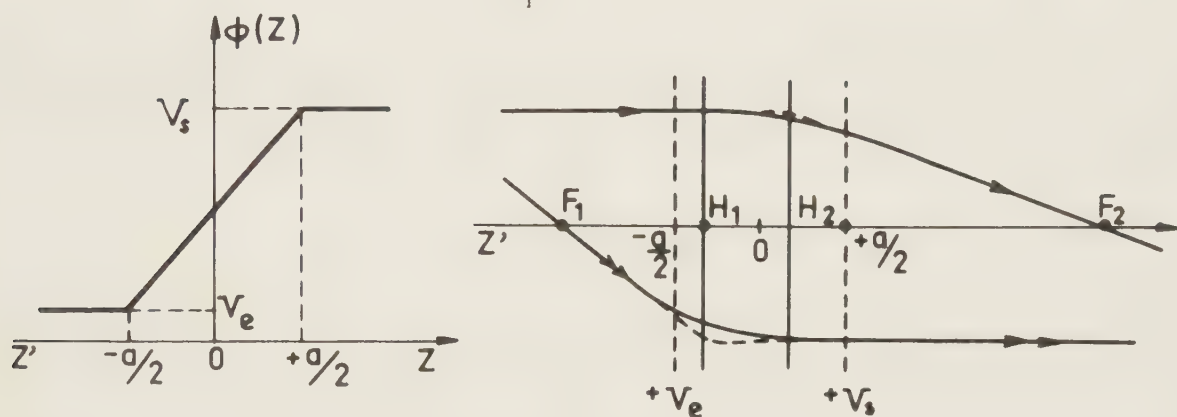


Fig. 16 : Eléments cardinaux de la lentille électrostatique.

En prenant pour plan d'origine le plan médiateur du segment a (fig. 16), on a :

$$\phi(Z) = \frac{V}{a} Z + \frac{2V_e + V}{2} \quad (45)$$

Après avoir intégré (éq. 44) et posé :

$$\frac{n V}{E_o} = \gamma , \quad (46)$$

On trouve :

$$f_2 = \frac{16a}{3\gamma^2} (1+\gamma)^{5/4}. \quad (47)$$

On a de même :

$$f_1 = \frac{16a}{3\gamma^2} (1+\gamma)^{3/4} \quad (48)$$

$$Z_{H_1} = \frac{16a}{3\gamma^2} (1+\gamma)^{3/4} \{ (1+\gamma)^{1/4} - 1 \} \quad (49)$$

$$Z_{H_2} = \frac{16a}{3\gamma^2} (1+\gamma)^{5/4} \left\{ \left(\frac{1}{1+\gamma} \right)^{1/4} - 1 \right\}. \quad (50)$$

Supposons $V = 10$ kV et $E_0 = 100$ keV, on obtient :

$f_2 \sim 500$	a	lorsque	$n = 1$
~ 140	a	"	$n = 5$
~ 13	a	"	$n = 10$
~ 3	a	"	$n = 30$

Ces valeurs incitent à penser que l'approximation de la lentille mince n'est compatible avec la définition de cette lentille que pour les charges faibles. Cette approximation ne permet donc pas d'interpréter les trajectoires des charges élevées ($n > 10$). D'ailleurs, dans le cas de ces charges élevées, nous adoptons généralement pour V la valeur optimum (section I-2) :

$$V_{opt} = \frac{2E_0}{n}.$$

Il y correspond la valeur $\gamma = 2$; d'où :

$$f_2 \sim 5a.$$

CAS REEL :

Nous avons cherché à déterminer le rôle des différents paramètres qui influent sur le taux de comptage, en étudiant de plus près la variation de ce taux, dans le cas d'une source d' ^{241}Am . Comme la source avait déjà plusieurs mois d'âge, nous nous sommes contentés de suivre le comportement du groupe des atomes très chargés ($5 < n < 30$) sans nous attacher à suivre telle ou telle charge en particulier. A la suite de cette étude, nous pouvons énoncer les quelques règles empiriques suivantes :

a - Pour une base de vol et une distance des électrodes données, la variation du taux de comptage en fonction de V admet un maximum (fig. 17).

Lors de ce maximum, le taux de comptage peut être 4 à 10 fois plus grand qu'en l'absence d'accélération.

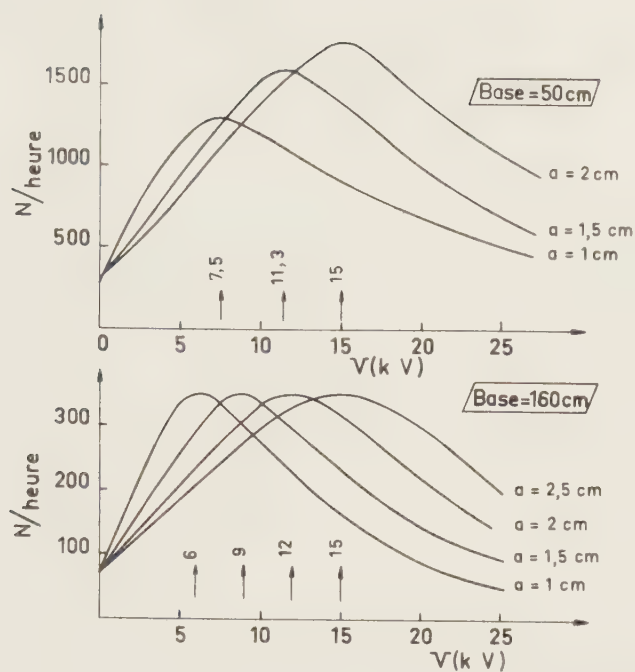


Fig. 17 : Taux de comptage, pour $n \sim 15$, en fonction du champ accélérateur.

b - Pour une base de vol donnée, le taux de comptage passe par un maximum à champ constant; dans les deux cas illustrés par la fig. 17, on a :

$E_{\text{opt}} = 7,5 \text{ kV/cm}$, lorsque la base est de 50 cm

$E_{\text{opt}} = 6 \text{ kV/cm}$, lorsque la base est de 160 cm

c - Le champ optimum diminue lorsque la base de vol s'allonge :

Base (cm)	30	50	100	160
$E_{\text{opt}} \text{ (kV/cm)}$	9,5	7,5	6,5	6

d - Pour une base de vol et une tension accélératrice V données, le taux de comptage augmente avec a lorsque V est supérieure à 15 kV. On a, par exemple, pour $V = 20 \text{ kV}$ et une base de 50 cm :

$a \text{ (cm)}$	1	1,5	2
N/heure	700	1000	1400

Si V est inférieure à 6 kV, il se produit l'effet inverse. Ainsi, pour $V = 5 \text{ kV}$ et la même base que précédemment, on a :

$a \text{ (cm)}$	1	1,5	2
N/heure	1150	950	800

Pour les valeurs de V comprises entre 5 et 15 kV, c'est-à-dire pour celles précisément que nous avons couramment utilisées, il y a compétition entre les deux effets.

I-7 : EFFETS DE SURFACE ET DE PRESSION

Toutes les sources α que nous avons étudiées étaient déposées sur un support solide et placées dans une chambre à vide. Il est intéressant de chercher quelle peut être l'influence du support et de la pression résiduelle sur la charge primaire des atomes de recul, car la charge mesurée peut être très différente de cette charge primaire. D'autre part, nous n'avons pris aucune précaution spéciale pour éviter à nos sources le contact avec l'air atmosphérique, aussi bien pendant leur élaboration que pendant certains réglages au cours des expériences. Ainsi, ces sources étaient recouvertes et contaminées par diverses impuretés, à base principalement de carbone, d'azote et d'oxygène. En effet, l'atmosphère qui entoure un émetteur α nu est intensément ionisée par les particules α et les atomes de recul - il existe $\sim 3.10^3$ ions, par atome de recul, sur une épaisseur d'environ 50μ autour de la source et 100 fois plus d'ions ($\sim 10^5$) par particule α , sur une épaisseur de 5 cm. Une partie notable de ces ions peut atteindre le support et y adhérer, formant, soit une mince couche de quelques Å, soit des agglomérats moléculaires.

INFLUENCE DU SUPPORT :

Le cas le plus favorable pour déterminer l'influence du support (et de la source) sur la charge des atomes de recul est celui des atomes en coïncidence avec des particules α allant au fondamental : en effet, ces atomes acquièrent leur charge initiale au cours de l'acte de désintégration lui-même, pendant qu'ils sont encore dans la source, et ont donc une certaine probabilité d'interagir avec les atomes du support.

D'après nos résultats expérimentaux, il est impossible de dire quel est le rôle réel du support dans la charge finale observée. Quel que soit le support utilisé (mica, alumine, polystyrène), nous n'avons remarqué aucune différence notable, pour un isotope donné, entre les différents spectres de charge obtenus. Il est vrai que nous n'avons jamais essayé les trois supports pour le même isotope; pour le dépôt actif, nous n'avons utilisé que le polystyrène et le mica et pour le ^{223}Ra que le mica et l'alumine.

INFLUENCE DES COMPOSES ADSORBES :

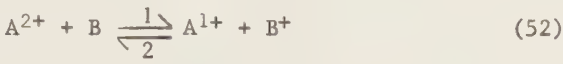
Les composés adsorbés par la source, CO_2 , H_2O ... peuvent constituer un film plus ou moins hétérogène sur le trajet des atomes de recul. Des collisions sont donc possibles, pouvant modifier la charge primaire de ces atomes. D'après le paragraphe précédent, ces collisions mettent surtout en jeu des atomes de recul peu chargés : charges 2^- , 1^- , 0 , 1^+ , 2^+ , 3^+ principalement. Elles peuvent donner lieu à un échange de charges du type $A^+ + B \rightarrow B^+ + A$ (51), suivant les valeurs respectives des potentiels d'ionisation des atomes A et B.

Le tableau VI donne quelques unes de ces valeurs (en eV) :

élément \ degré d'ionisation	I ⁰	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X
^{12}C	11,26	24,38	47,86	64,48	391,99	489,84				
^{14}M	14,54	29,60	47,43	77,45	97,86	551,93	664,83			
^{16}O	13,61	35,15	54,93	77,39	113,87	138,08	739,11	871,12		
^{81}Br	6,11	20,42	29,8	50	64	81	98	117	145	166
^{87}Rb	7,41	15,03	31,93	39	69,7	84	103	112	142	173
^{86}Rn	10,74	21,4	29,4	44	55	67	97	111	166	190
^{88}Ra	5,28	10,14	34	46	59	76	89	103	140	156

Tableau VI : Potentiels d'ionisation des éléments C, N, O et des atomes de recul que nous avons étudiés.

Il ressort de ce tableau que les atomes de recul A^{3+} peuvent devenir des atomes A^{2+} par collision avec des atomes neutres C, O, N en ionisant ces derniers à l'état d'ions C^+ , O^+ , N^+ . De même, les atomes de recul A^{2+} , A^{1+} et A peuvent devenir des atomes A^{++} par collision avec des ions monochargés C^+ , O^+ , N^+ . Quant aux échanges :



ils sont beaucoup plus probables dans le sens $\xrightarrow{1}$ pour Rn^{2+} et Tl^{2+} que pour Pb^{2+} ou, à fortiori, pour Ra^{2+} et inversement dans le sens $\xleftarrow{2}$.

Expérimentalement, on constate une absence de charges 2 dans les spectres de charge des atomes de recul Tl^{n+} et Rn^{n+} . Cette absence serait peut-être due, entre autres causes, à une grande probabilité de collisions du type $\xrightarrow{1}$ avec les atomes C, N et O.

Mais la présence, dans la source, d'atomes C, N ou O, plus ou moins ionisés, peut avoir une autre conséquence; elle peut favoriser la formation dans la source d'agglomérats moléculaires entre ces atomes légers et ceux lourds de la source radioactive. Lors d'une désintégration α , le noyau lourd A de la paire A-B peut propulser le noyau léger B et le projeter hors de la source. L'ion B^{m+} se trouve ainsi en coïncidence systématique avec des particules α et, dans certaines conditions d'accélération, il peut avoir le même temps de vol que tel ou tel atome lourd A^{n+} . Les atomes B^{m+} pourraient donc fausser la distribution des temps de vol des atomes de recul A^{n+} , car rien dans notre méthode ne nous permet de reconnaître si les coups comptés dans un canal sont dus à un atome léger peu chargé ou à un atome lourd très chargé. Il est facile cependant de s'assurer que la contribution des atomes légers, au spectre de vol des atomes lourds, est négligeable car il suffit qu'elle le soit pour des conditions de vol bien déterminées, telles par exemple que les plus lents des atomes légers volent plus vite que les plus rapides des atomes lourds. C'est ce que nous avons réalisé en choisissant une base de 1m et une tension accélératrice de 10 kV. Les spectres de charge des atomes légers et lourds n'empiètent pas l'un sur l'autre (fig. 18) et peuvent être analysés séparément. Sur celui qui se rapporte aux atomes

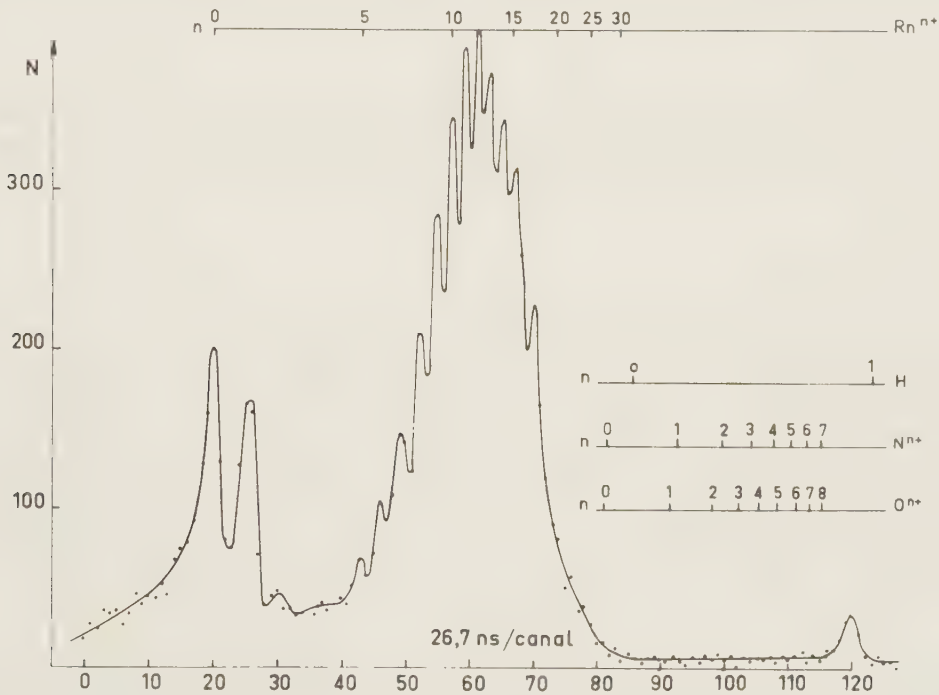


Fig. 18 : Contribution des atomes légers au spectre de charge des atomes de recul $^{219}\text{Rn}^{n+}$.

légers, on ne distingue qu'un seul "pic", de faible intensité, correspondant à un état d'ionisation très élevé, tel que :

$$\frac{1}{2} < \frac{\text{nombre de charge}}{\text{nombre de masse}} < 1.$$

Pour étalonner le spectre de charge des atomes légers (masse m), nous avons supposé que ces atomes quittaient la source avec une vitesse initiale v_i , due à une collision élastique frontale avec un atome lourd (masse M) animé d'une vitesse de recul v_r :

$$v_i \approx \frac{2M}{M+m} v_r \quad (53)$$

INFLUENCE DE LA PRESSION :

La pression des gaz résiduels, dans la chambre à vide, était en général inférieure à 10^{-6} Tor pendant toute la durée de nos mesures. C'est dans cette chambre, située à l'une des extrémités du tube de vol, que se trouvaient la source et les grilles délimitant la région d'accélération; à l'autre extrémité se trouvait le multiplicateur; il y régnait une pression double de celle de la chambre, lorsque le tube de vol avait plus d'un mètre de longueur.

Pour qu'une modification dans la charge des atomes de recul modifie leur temps de vol, il faut qu'elle ait lieu avant ou pendant leur accélération, c'est-à-dire, dans notre montage, au cours des 10 premiers cm de leur trajet. Cette distance est nettement plus petite (environ 1000 fois) que le libre parcours moyen moléculaire des gaz résiduels et à fortiori que le libre parcours moyen des atomes de recul; ceux-ci, en effet, ont une vitesse au moins 500 fois plus grande que la vitesse moyenne moléculaire ($\sim 5 \cdot 10^4$ cm/s) des gaz résiduels à 20°C (température ordinaire au cours de nos expériences). Ainsi, il est très improbable que les atomes de recul subissent des collisions en vol, avant ou pendant leur accélération. Les charges que nous mesurons sont donc indépendantes de la pression dans le tube de vol, lorsque celle-ci est suffisamment faible.

Nous avons vérifié ce résultat jusqu'à des pressions voisines de 10^{-3} Tor, c'est-à-dire jusqu'à la pression maximum compatible avec le bon fonctionnement du multiplicateur. Nous n'avons constaté aucun élargissement des pics, ni de la distribution totale; il n'y a qu'une diminution de l'efficacité du multiplicateur de presque 50% en passant de 10^{-6} Tor à 10^{-3} Tor.

CAS DES ATOMES TRES CHARGES :

Pour qu'il y ait interaction entre la source et les atomes de recul très chargés, il faut que les deux processus successifs de désintégration α et de conversion interne aient lieu avant que le noyau de recul ait eu le temps de quitter la source. Tout dépend donc de la vie moyenne des niveaux excités par la désintégration α . Si elle est assez courte pour que l'atome de recul ne parcoure que quelques diamètres atomiques, il est très probable que la charge de cet atome sera modifiée dans la source; si, par contre, elle lui permet de parcourir quelques microns, la conversion interne aura lieu beaucoup plus fréquemment en vol et la charge qui en résultera ne sera plus sujette aux interactions avec la source. Cette dernière condition est réalisée si la vie moyenne est supérieure à 10^{-11} s; en effet, c'est le temps qu'il faut à un atome de recul, animé d'une vitesse de l'ordre de 10^7 cm/s, pour parcourir une distance de 1μ .

La plupart des transitions qui étaient mises en jeu dans les études que nous avons faites étaient des transitions $E1$, $M1$ ou $E2$, de quelques dizaines à quelques centaines de keV; les plus rapides d'entre elles étaient de l'ordre de 10^{-11} s précisément. Il est donc très vraisemblable que les effets de source ont été négligeables en ce qui concerne la charge des atomes de recul très chargés; ces effets n'intervenaient que dans la distribution

des vitesses initiales de ces atomes.

D'autre part, il faut également tenir compte du processus de réorganisation du cortège. On admet généralement que ce processus a lieu dans les couches profondes, en un temps très court : 10^{-13} à 10^{-15} s. Si l'on adopte 10^{-15} s, l'atome de recul a à peine le temps de parcourir une couche atomique et la situation est pratiquement celle laissée par le processus de conversion interne; mais si l'on adopte la valeur de 10^{-13} s, l'atome de recul parcourt une distance 100 fois plus grande et a une plus grande probabilité d'acquies sa charge finale en vol, même si la conversion interne se fait en 10^{-14} s.

Expérimentalement, il existe deux critères qui devraient permettre de déterminer si les processus de conversion interne et de réorganisation du cortège ont lieu dans la source ou en dehors : c'est, d'une part, la déformation des pics correspondant aux différentes charges, d'autre part l'existence des ions légers. En effet, si les atomes de recul acquies leur charge élevée pendant qu'ils sont encore dans la source, leur temps de vol devrait être grandement tributaire des collisions qu'ils peuvent subir dans la source, car ces collisions se traduisent par une diminution et de la charge et de l'énergie; on devrait donc observer une plus grande intensité en charges moins élevées et une plus grande déformation des pics correspondant à ces charges, du côté des temps de vol longs. Si, par contre, les atomes de recul acquies leur charge élevée en vol, les collisions dans la source n'affectent pas la distribution de charges et se traduisent seulement par une perte d'énergie initiale, c'est-à-dire par une queue du côté des temps de vol longs, queue identique quelle que soit la charge. De même, en ce qui concerne les ions légers, ils sont beaucoup plus probables dans le premier cas que dans le second.

D'après l'ensemble de nos résultats, l'influence de la source sur l'état d'ionisation des atomes de recul très chargés semble négligeable. Cela tendrait à prouver qu'en général, pour ce qui est des sources que nous avons étudiées, la vie moyenne totale des processus de conversion interne et de réorganisation du cortège était assez longue pour permettre à l'atome de recul de quitter la source sans que ces processus aient encore eu lieu tous les deux. Il existe cependant une certaine probabilité pour que tout se passe dans la source en moins de 10^{-13} s : c'est ce qui ressort de la présence des ions légers dans le spectre de temps de vol obtenu (fig. 18).

D E U X I E M E P A R T I E

- -
o

DONNEES ACTUELLES SUR L'IONISATION INTERNE ET LA REORGANISATION DU CORTEGE

GENERALITES :

De nombreuses expériences montrent que toute désintégration α ou β est le plus souvent accompagnée d'une modification plus ou moins profonde du cortège de l'atome parent. En effet, avant la désintégration, on peut supposer que cet atome est, en général, neutre; après la désintégration, si aucune modification n'intervenait dans le cortège, il devrait, en général, avoir une charge négative 2, en émission α et une charge positive 1, en émission β^- . Or, il n'existe pratiquement pas d'atomes de recul portant une charge 2^- , en émission α et environ 20% des atomes de recul, en émission β^- ont une charge positive supérieure à l'unité. La loi de conservation de la charge totale du système qui se désintègre, telle qu'elle vient d'être présentée, n'est donc pas respectée. Il faut en conclure qu'une ionisation supplémentaire intervient, pendant la désintégration elle-même, due à la perturbation que subissent les électrons du cortège, lors de cette désintégration.

Pour faciliter l'analyse de ce phénomène, on attribue généralement la perturbation ressentie par les électrons du cortège à trois causes distinctes, bien qu'elles ne soient pas nécessairement indépendantes :

- a) - Modification du champ coulombien du noyau dont la charge passe de Z à Z' ;
- b) - Recul du noyau;
- c) - Interaction directe entre la particule chargée émise et un électron du cortège : phénomène analogue à l'ionisation externe.

Par suite de la première cause, le cortège doit s'adapter au nouveau champ nucléaire; par suite de la deuxième, il est brusquement ébranlé et par suite de la dernière, l'un des électrons du cortège peut être diffusé, par collision avec la particule émise par le noyau; dans tous les cas, un ou plusieurs électrons peuvent être excités à des niveaux liés non occupés de l'atome, ou même peuvent être émis hors de l'atome. L'excitation ou l'ionisation ainsi obtenues sont dites internes {St 67}, par analogie avec des phénomènes parallèles, mis en jeu lors des désintégrations nucléaires : freinage interne, conversion interne, diffusion Compton interne... Cependant, ce point de vocabulaire n'est pas unanimement adopté; certains auteurs emploient, dans le même sens, le terme auto-ionisation {Er 68}; d'autres Be 53, {Du 61} utilisent ces mêmes expressions avec des sens restrictifs: ionisation interne, si la cause c) est seule en jeu et auto-ionisation si c'est la cause a). D'autre part, la cause a) joue un rôle prépondérant en émission β et conduit à une méthode de calcul (perturbation soudaine) très générale qui s'applique, même en dehors de toute intervention directe de la charge nucléaire, à tous les phénomènes qui se traduisent par une variation brusque du champ central dans lequel sont plongés les électrons du cortège : conversion interne, effet Auger, capture électronique... Aussi, ce mode d'ionisation très fréquent, est-il souvent désigné, par allusion à la soudaineté qui le caractérise, sous le vocable "ébranlement" (shake-off).

La notion de rapidité de variation de la perturbation apportée au cortège par la désintégration est très importante, pour l'étude du phénomène d'ionisation interne. En effet, pour qu'un électron du cortège soit excité ou ionisé, il faut qu'il subisse une transition entre deux états quantiques distincts de l'atome initial et de l'atome final. Or, la probabilité d'une telle transition est très différente suivant que la perturbation est brusque ou lente. Dans le cas extrême d'une perturbation instantanée (approximation soudaine), il est possible de trouver l'électron dans l'un quelconque des états propres de l'atome final, tandis que dans l'autre cas extrême, d'une perturbation infiniment lente (approximation adiabatique), l'électron a une grande probabilité de conserver ses nombres quantiques initiaux.

En général, on admet que la perturbation est brusque, si le temps τ de

variation de l'Hamiltonien du système atomique est très court :

$$\tau \ll \frac{\hbar}{E_i - E_f}$$

et qu'elle est adiabatique, si la dérivée de l'Hamiltonien par rapport au temps est très petite :

$$\frac{dH}{dt} \ll \frac{(E_i - E_f)^2}{\hbar}$$

E_i et E_f désignant les niveaux d'énergie atomiques initial et final. Dans le cas des atomes lourds, on constate que la condition de soudaineté est vérifiée pour la plupart des émetteurs β , quelle que soit la couche de l'électron ionisé, mais qu'elle ne l'est pas contre pas pour les émetteurs α , lorsqu'il s'agit d'ionisation en couche profonde, car, dans ce dernier cas, la particule α traverse le cortège avec une vitesse environ une dizaine de fois inférieure aux vitesses orbitales des électrons K .

L'effet de collision directe a souvent été ignoré à priori dans les évaluations théoriques de l'ionisation interne. Il n'a été considéré que dans le cas de l'émission β , par E.L. FEINBERG {Fe 65} qui en a donné un traitement semi-relativiste et par R.M. WEINER {We 66} qui a adopté une méthode semi-phénoménologique. La contribution du processus mécanique, à la probabilité d'ionisation interne, est estimée être bien inférieure à celle qui résulte de la variation du potentiel central, sauf peut-être pour les particules β émises par les noyaux lourds avec une faible énergie. Pour l'ionisation en couche K , par exemple, ces deux contributions sont dans le rapport approximatif des énergies $\frac{E_K}{E_\beta}$, de liaison E_K et de désintégration E_β .

Mais la vérification expérimentale de ces résultats théoriques reste problématique, car il est difficile de séparer les processus a), b), et c) et même dans ce cas, les incertitudes expérimentales sont en général supérieures aux effets étudiés et rendent toute comparaison hasardeuse. Telle est, par exemple, la situation, dans le cas choisi par R.M. WEINER, des isotopes 39 et 41 de l'argon. Cependant, dernièrement, P. ERMAN et al. {Er 68} ont réussi à séparer les effets a) et c) en analysant l'ionisation interne en couche K de deux émetteurs β^- particulièrement favorables (sans effets parasites) : ^{169}Er et ^{210}Bi (Ra E). Il a été constaté, dans les deux cas, que l'ionisation interne était pratiquement indépendante de l'énergie des particules β dans toute l'étendue du spectre β . Or, cette indépendance est caractéristique de l'effet d'ébranlement a); l'effet de collision c) étant très étroitement lié ($\sim \frac{1}{v}$) à la vitesse des particules β .

IONISATION INTERNE EN EMISSION α :

Dans les calculs théoriques qui ont été entrepris sur ce sujet, les auteurs considèrent que l'émission α constitue pour le système atomique une petite perturbation dépendante du temps; cette dépendance étant différente suivant qu'il s'agit des électrons des couches profondes du cortège ou des électrons de valence. Pour ces derniers, on peut, à la limite, traiter le problème de l'ionisation interne par la méthode de perturbation brusque car la vitesse des particules α est en général (dans les émetteurs α lourds) nettement plus grande que la vitesse orbitale moyenne des électrons périphériques. Par contre, pour les électrons K ou L , c'est plutôt, à la limite, l'approximation adiabatique qu'il convient d'envisager. Quant aux électrons intermédiaires, dont la vitesse est voisine de celle des particules α , aucun calcul, jusqu'à présent, n'a été proposé. D'autre part, il faut considérer que la perturbation subie par le cortège atomique, lors de l'émission α , est aussi bien d'origine coulombienne (variation de la charge nucléaire de $Z + 2$ à Z , modification du champ local le long de la trajectoire de la particule α) que d'origine mécanique (recul du noyau, vitesse de la particule α). Il en résulte une certaine diversité dans les méthodes de calcul adoptées par les divers auteurs.

A. MIGDAL {Mi 41} a considéré que la perturbation en émission α , pour les électrons des couches profondes du cortège, résultait de la seule variation $V(t)$ du champ du noyau :

$$V(t) = - \frac{2e^2}{r} = - \frac{2e^2}{\sqrt{x^2+y^2+(z-v_\alpha t)^2}}$$

et que cette perturbation était lente (contrairement à l'émission β que MIGDAL étudie aussi) :

$$\frac{Z e^2}{\hbar v_\alpha} \gg 1$$

ce qui l'a conduit à développer l'intégrale de probabilité de transition entre les états a et b :

$$w_{a \rightarrow b} = \frac{1}{\hbar^2 \omega_{ba}^2} \left| \int_0^\infty \frac{\partial V_{ba}}{\partial t} e^{i\omega_{ba} t} dt \right|^2$$

en série de puissances de la vitesse v_α de la particule α .

J.S. LEVINGER {Le 55} a amélioré le modèle précédent en introduisant dans l'Hamiltonien du système atomique le mouvement de la particule α et du noyau de recul :

$$H(t) = \frac{-2e^2}{\sqrt{x^2+y^2+(z-v_\alpha t)^2}} - \frac{(Z-2)e^2}{\sqrt{x^2+y^2+(z+v_n t)^2}}$$

Les probabilités d'excitation et d'ionisation s'expriment alors en fonction de la vitesse v_z du centre de charge.

$$v_z = \frac{(Z-2)v_n - 2v_\alpha}{Z}$$

et la contribution du terme quadripolaire de l'interaction coulombienne n'est plus négligeable devant le terme dipolaire, comme l'avait énoncé MIGDAL.

H.M. SCHWARTZ {Sc 55} a adopté comme perturbation le potentiel :

$$V(t) = -2e^2 \sum_i \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{vt}|}$$

où $\vec{r}_i$ est le vecteur position du i -ième électron et $\vec{v}$ la vitesse de la particule α dans le système atomique en mouvement. De plus, il définit les fonctions propres de l'Hamiltonien non perturbé, par la relation :

$$u_n = e^{\frac{i\mathbf{m}}{\hbar} \vec{v} \cdot \sum \vec{r}_i} u_n^{Z-2}$$

où u_n^{Z-2} est une fonction propre correspondante pour un atome stationnaire de nombre ato-

mique ($Z-2$) et v_n la vitesse de recul. Cette méthode de calcul a été reprise par F. GRARD, en explicitant les équations aussi bien dans un référentiel centré sur le noyau qui recule {Gr 56a} que dans le système fixe du laboratoire {Gr 56b}. Enfin, en 1963, W. RUBINSON {Ru 63} a fait le point de l'aspect théorique du problème et inclus dans les probabilités de transition, pour les électrons internes du cortège, non seulement celles qui concernent leur émission hors de l'atome, mais aussi celles qui concernent leur excitation vers des états liés, dans la mesure où ces états sont disponibles. La probabilité $P_k(n, \ell)$ pour qu'un électron, dans l'état quantique $|n, \ell\rangle$ avant la désintégration, soit trouvé dans un état $n' > k$ après cette désintégration, s'exprime alors par :

$$P_k(n, \ell) = \frac{\left(v_n - \frac{2}{Z} v_\alpha\right)^2}{Z^2} C_k(n, \ell)$$

où $Z+2$ est le numéro atomique du noyau qui se désintègre. Les coefficients $C_k(n, \ell)$ sont déduits des éléments de matrice de moment dipolaire, tabulés pour l'hydrogène {Be 57}.

Jusqu'à présent, il existe un assez profond désaccord entre les prévisions théoriques des probabilités d'ionisation (surtout dans les couches L ou M) et les résultats expérimentaux. Pour ^{210}Po , par exemple, les calculs théoriques précédents donnent des probabilités d'ionisation (et d'excitation) en couche M de 1 à 2 ordres inférieures à celles mesurées. Une théorie plus élaborée, due à G.W. SCHAEFER, aurait réduit notablement ce désaccord; nous n'avons toutefois trouvé aucune référence, dans ce sens (dans les Physics Abstracts de ces dernières années).

Parmi les calculs plus récents, il n'existe que celui de G. CIOCCHETTI et R. MOLINARI {Ci 65}, pour l'ionisation interne en couche K. Ces auteurs adoptent, pour décrire la perturbation du cortège, un Hamiltonien de la forme :

$$H(t) = -\vec{v}_n(t) \cdot \vec{p} - \frac{2e^2}{|\vec{r} - \vec{r}_\alpha(t)|}$$

où $\vec{r}_\alpha$ est le vecteur position pour la particule α et $\vec{r}$ et $\vec{p}$ le vecteur position et son moment conjugué pour l'électron. Leur calcul se distingue des précédents par l'importance qu'il accorde au terme monopolaire du développement en série de l'interaction coulombienne entre un électron du cortège et la particule α . La probabilité d'ionisation, ainsi obtenue, ne diffère plus de la probabilité mesurée expérimentalement que par un facteur 2 environ, dans le cas de l'isotope ^{210}Po .

Il faut noter toutefois que l'étude expérimentale de l'ionisation interne est, elle-même, très délicate; les méthodes utilisées (électrons et rayons X de réarrangement) devant tenir compte d'autres phénomènes (conversion interne, freinage interne...) beaucoup plus probables.

On peut retenir comme ordre de grandeur de la probabilité d'ionisation interne des couches profondes : 10^{-6} en couche K, 10^{-4} en couche L et 10^{-2} en couche M, par particule α émise. Cette contribution au bilan total d'ionisation des atomes de recul est donc très faible.

IONISATION INTERNE EN EMISSION β :

Dans la plupart des désintégrations β des noyaux lourds, l'énergie cinétique de la particule émise est suffisamment grande, pour que l'on puisse traiter le problème de l'ionisation interne, par variation de la charge nucléaire (en négligeant l'effet de recul et l'effet de collision), comme un cas de perturbation soudaine : l'Hamiltonien du système atomique varie en un temps τ , inférieur à la période de transition $\left(\frac{1}{\omega_{ba}}\right)$ de l'état initial

a vers l'état final b . Les fonctions d'onde des électrons du cortège restent alors pratiquement ce qu'elles étaient avant la perturbation; la variation relative $\frac{\Delta\psi_i}{\psi_i}$, pour un électron i du cortège, étant en effet de l'ordre de $v_i \tau$ où v_i est la vitesse orbitale de l'électron i . Ainsi, ces fonctions ne sont plus, en général, des fonctions propres de l'Hamiltonien final.

Le défaut d'orthogonalité des fonctions d'onde, initiale et finale, est représenté par l'expression :

$$C_{ba} = \int \psi_b^* \psi_a^o dq .$$

Le carré de cette intégrale détermine la probabilité de transition $w_{a \rightarrow b}$ du système, de l'état a vers l'un quelconque des états b et traduit donc la possibilité de trouver l'atome final dans un état ionisé ou excité :

$$w_{a \rightarrow b} = | \langle b | a \rangle |^2$$

Plusieurs évaluations approchées de l'intégrale de recouvrement ont été proposées pour l'ensemble des éléments du tableau périodique {Go 37, Sc 53, Be 53, Gr 58, Ba 63}. Dans tous les cas, il a été fait l'hypothèse d'états individuels pour les électrons du cortège et les fonctions d'onde utilisées ont été essentiellement des fonctions hydrogénoïdes non relativistes, sauf dans le calcul plus élaboré de P. STEPHAS et B. CRASEMANN {St 67} (qui se limite d'ailleurs aux seuls électrons K).

Des calculs précis ont également été effectués pour certaines valeurs de Z, par A. WINTHER {Wi 52}, dans le cas de ^6He , au moyen des fonctions d'onde de HILLERAS et par A.E.S. GREEN {Gr 57}, dans le cas de ^{85}Kr , au moyen de fonctions d'onde de HARTREE-FOCK. Enfin, tout récemment, un calcul basé sur les fonctions d'onde non relativistes de HARTREE-FOCK et relativistes de HARTREE-FOCK-SLATER a été réalisé à Oak-Ridge {Ca 68} sur une calculatrice (CDC 1604-A) pour un large éventail d'atomes, de $Z=2$ à $Z=92$. Dans ce calcul, il a été tenu compte du fait que les transitions $a \rightarrow b$ obéissent aux règles de sélection $\Delta S = 0$, $\Delta L = 0$ et $\Delta J = 0$ et une correction a été faite pour respecter le principe de PAULI qui interdit les excitations vers des états liés déjà occupés. L'accord entre la théorie et l'expérience est satisfaisant .

Une évaluation rapide des probabilités d'ébranlement P_s peut être obtenue, quel que soit l'état quantique $|n, l, j\rangle$, en appliquant la relation :

$$P_s = \frac{\alpha}{(Z - \sigma)^2}$$

où α est une constante pour Z donné, et σ la constante d'écran propre à chaque orbitale.

Si nous avons insisté sur ce mécanisme de l'ionisation en émission β alors que nous n'avons étudié que des émetteurs α , c'est parce que, comme nous l'avons déjà mentionné, ce mécanisme se rencontre également en conversion interne et dans le processus Auger, et, plus généralement, chaque fois qu'il y a lieu de considérer dans le cortège une variation brusque du champ coulombien central, analogue à celle qui secoue le cortège lors du départ brutal d'une particule β . Ce sont M.L. PERLMAN, J.A. MISKEL et M. WOLFSBERG qui ont, les premiers, invoqué ce mode d'ionisation, pour expliquer la charge moyenne {Pe 53} et la distribution de charge {Wo 55} des atomes de recul ^{37}Cl dans la désintégration par capture électronique de ^{37}Ar . Depuis, cette hypothèse a été confirmée et bien établie par l'équipe d'Oak-Ridge {Ca 65}.

D'après l'expression de P , la charge effective joue un rôle essentiel dans la probabilité d'ébranlement et y intervient au carré. Il est donc possible d'étendre les résultats obtenus en émission β , aux autres cas, en tenant compte simplement des variations respectives de la charge effective. Ainsi, dans le cas du processus Auger, on peut écrire :

$$P = P_{\beta} (\Delta Z)^2$$

où la transition a lieu en présence de deux lacunes profondes.

Dans le cas de la conversion interne, on a :

$$P = P_{\beta} \left(\frac{\Delta Z}{\Delta Z(\beta)} \right)^2$$

où la transition a lieu en présence d'une seule lacune profonde.

Enfin, dans le cas de la désintégration α , on définit de même la probabilité d'ébranlement des électrons externes (couches O, P, Q) :

$$P = \frac{\Delta Z}{(Z - \sigma)^2}$$

II-2 : CASCADES DE LACUNES

La vie moyenne d'une lacune profonde est extrêmement brève : 10^{-14} à 10^{-16} s pour une lacune K, par exemple, d'après la largeur de l'état K (~ 1 eV) {Pa 59}. Un processus de réarrangement est aussitôt déclenché dans le cortège qui transfère cette lacune de l'intérieur vers l'extérieur. On admet généralement qu'au cours de ce processus, la lacune primaire est comblée par un électron des couches supérieures du cortège (nombre quantique principal n supérieur ou tout au plus égal à celui de la lacune); ceci a pour conséquence de remplacer la lacune primaire par une lacune plus extérieure. Celle-ci, à son tour, est comblée, et par là même, remplacée par une nouvelle lacune encore plus extérieure. Le processus continue ainsi jusqu'à ce que la lacune finale apparaisse dans la couche la plus externe du cortège atomique. Pour caractériser ce mode de réarrangement, on dit qu'il se fait par "cascade de lacunes".

Il va de soi que ceci ne constitue qu'une description imagée et approchée du phénomène réel, lequel est beaucoup plus complexe qu'une simple interaction, indépendante du temps, entre deux états individuels du cortège. Mais bien qu'approximative, cette description permet de rendre compte, en moyenne, de la plupart des résultats expérimentaux. On y distingue, par commodité, plusieurs mécanismes distincts, suffisamment simples pour que la probabilité d'excitation ou d'ionisation qui en résulte puisse être calculée.

MECANISMES DE REARRANGEMENT :

Les plus connus d'entre eux sont le rayonnement X et l'effet Auger : dans les deux cas, la lacune est comblée par un électron dont le nombre quantique principal est plus grand que celui de la lacune; mais alors que, dans le premier cas, l'énergie de la transition électronique apparaît sous forme de radiation électromagnétique, elle est, dans le second cas, transférée à un électron du cortège. Ces deux mécanismes sont toujours en compétition et donnent lieu à un spectre discret: raies X et électrons Auger; aussi, ont-ils été les premiers mis en évidence par les expérimentateurs et largement étudiés par les théoriciens. Lors de l'émission d'un photon X, le nombre de lacunes reste inchangé; il est augmenté d'une unité lors de chaque processus Auger. Pour éviter toute confusion avec d'autres processus similaires, nous qualifierons parfois de simple le processus Auger classique, tel qu'il a été décrit par P. AUGER {Au 25} lors de sa découverte. Pour des raisons analogues, nous éviterons le terme "cascade Auger", pour désigner une cascade de lacunes; ce terme laisse d'ailleurs sous-entendre que les lacunes progressent de couche en couche, en doublant à chaque étape, or, ce n'est pas toujours le cas (progression accompagnée de photons X, par exemple). Notons enfin que si le réarrangement du cortège ne se faisait que par transitions radiatives et Auger simples, on pourrait facilement connaître le nombre de transitions Auger impliquées dans le réarrangement du cortège d'un atome donné, en mesurant la charge finale de cet atome, car le nombre de transitions Auger serait égal à la charge, à une unité près. C'est parce que cette relation entre la charge et l'effet Auger simple n'est pas vérifiée, dans la plupart des cas, et que les spectres X et Auger, en général, présentent des anomalies par rapport au processus décrit ci-dessus (raies satellites, par exemple, étudiées notamment par Y. CAUCHOIS {Ca 33} et M. VALADARES {Va 40}), que d'autres mécanismes ont été suggérés.

Parmi ces autres mécanismes invoqués pour expliquer les différents résultats expérimentaux, relatifs à la réorganisation du cortège, les principaux sont :

1) - Le processus Auger du type Coster-Kronig {Co 35}: la lacune et l'électron qui la comble ont le même nombre quantique principal et ne diffèrent que par leur nombre quantique orbital. La probabilité pour que ce processus soit en compétition avec un processus radiatif est extrêmement réduite; il y a donc toujours excitation simultanée d'un autre électron du cortège.

2) - Un processus du type mécanique : l'électron ou le photon qui traversent le cortège, au cours du processus de réarrangement, rencontrent, dans une collision directe, l'un des

électrons de l'atome.

3) - L'effet d'ébranlement : le départ brusque d'un électron Auger ou Coster-Kronig d'une couche atomique interne, apparaît aux électrons externes comme une variation soudaine de la constante d'écran et peut entraîner l'émission de l'un d'eux hors du cortège, c'est-à-dire peut conduire à l'apparition d'une lacune auto-crée par la cascade elle-même.

4) - Le processus Auger multiple : l'énergie de la transition Auger est transférée à plusieurs électrons, d'une même couche externe, qui sont émis hors du cortège. Ce type de processus a une probabilité non négligeable en fin de cascade (K-LLL dans Ne, L-MMM dans Ar, M-NNN dans Kr...); on observe une distribution continue d'énergie pour les électrons émis {Kr 66}.

5) - L'effet d'ébranlement multiple : la brusque variation du potentiel central donne lieu à l'émission de plus d'un électron hors du cortège.

Les mécanismes 2, 3 et 5 ne constituent pas des modes de remplissage des lacunes. En ce sens, ils ne font pas partie, à proprement parler, de la cascade de lacunes : ils en sont plutôt la conséquence. Leur contribution peut être calculée à part et ajoutée à la contribution des autres processus.

CALCUL D'UNE CASCADE DE LACUNES :

Le modèle de la cascade a été introduit par E.P. COOPER {Co 42} qui n'a considéré que les transitions radiatives et Auger simples. Il a été ensuite utilisé avec succès par A. SNELL et F. PLEASANTON {Sn 55} pour expliquer la possibilité de formation d'une charge 7 lors du réarrangement qui suit la capture K dans ^{37}Ar , en tenant compte de la transition Coster-Kronig $L_I - L_{II,III} M_I$ et en supposant que l'un des états M_I intervient deux fois lors de la cascade : vidé une première fois, il est rempli par un électron $M_{II,III}$, puis, il est vidé de nouveau. Mais c'est depuis que l'on a pu observer des distributions de charge complètes, c'est-à-dire depuis une dizaine d'années, que ce modèle s'est imposé et s'est avéré comme susceptible de décrire un important et complexe phénomène atomique.

On le concrétise parfois sous la forme d'une arborescence prenant naissance dans la couche où se trouve la lacune initiale et se développant, à travers les couches plus extérieures, par des ramifications de plus en plus nombreuses, vers la couche périphérique de l'atome (fig. 19). Il est tenu compte, au cours de ce développement, des conditions énergétiques et du nombre d'électrons disponibles dans chaque état quantique de l'atome.

Pour une même charge finale, il est toujours possible d'imaginer plusieurs cascades par des voies différentes, chacune d'entre elles ayant une probabilité propre. La probabilité totale de formation de cette charge, au cours du phénomène de réarrangement, est la somme des probabilités de chaque voie. Pour évaluer ces dernières, il faut connaître les rendements de tous les processus en compétition, à chaque étape de la cascade; ceci n'est possible que lorsque le nombre des voies et celui des électrons du cortège est réduit, et a été tenté avec succès dans plusieurs cas {Co 42, Pe 53, Ru 55, Wi 55, Kr 64, Ca 65, Kr 66}.

Mais dès que le nombre de combinaisons devient grand, il est préférable de recourir à une méthode de calcul du type Monte-Carlo. La calculatrice fixe au hasard, dans une table de probabilités pondérées, une des transitions possibles pour combler la lacune initiale. La ou les nouvelles lacunes introduites par la transition choisie sont notées et la calculatrice fixe au hasard le processus suivant, pour combler l'une de ces lacunes, puis l'autre s'il y a lieu, et ainsi de suite, jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de lacunes à combler dans les couches internes. La calculatrice recommence alors un nouvel essai, en repartant de la lacune initiale; après chaque étape, au cours de chaque essai, elle réduit les probabilités de transition vers les niveaux électroniques restants, proportionnellement au nombre d'électrons encore présents dans ces niveaux. On peut lui demander aussi de modifier les probabilités de transition vers les niveaux supérieurs, chaque fois qu'il y a plus d'une lacune dans les niveaux inférieurs (L ou M) car le champ atomique n'est plus le même; cela

affecte peu, cependant, les transitions Auger, de beaucoup les plus probables au début de la réorganisation du cortège; par contre, les transitions Coster-Kronig y sont plus sensibles. Finalement, le nombre total d'électrons enlevés au cortège, dans chaque essai, permet, si le nombre d'essais est suffisamment grand (quelques milliers) de générer un spectre de charge, qu'il est facile de comparer au spectre expérimental (lorsqu'il existe), soit pour tester les probabilités introduites au cours du calcul, soit pour évaluer l'influence des processus d'ébranlement ou de collision... De tels calculs ont été principalement réalisés par T.A. CARLSON et M.O. KRAUSE à Oak Ridge {Kr 67}.

On peut incorporer l'effet d'ébranlement du cortège, dans le programme Monte-Carlo, en enlevant un ou plusieurs électrons des couches externes, par lacune K ou L initiale, avant de déclencher la cascade.

ETUDES EXPERIMENTALES SYSTEMATIQUES :

Lorsqu'on ne dispose, pour étudier les cascades de lacunes, que de produits radioactifs, on a généralement affaire à des distributions où la contribution des lacunes primaires K ou L est inséparable de la contribution des lacunes primaires L, M ou N, car il est impossible d'agir sur des propriétés nucléaires, comme les coefficients de conversion interne par exemple. Aussi, dès 1958, A.H. SNELL et F. PLEASANTON {Sn 58} suggèrent-ils de recourir à des méthodes d'ionisation où l'on ait prise sur la qualité et la quantité des lacunes primaires introduites et qui permettent d'obtenir des spectres purs de réarrangement, correspondant à une lacune primaire unique, connue d'avance. Ces méthodes sont principalement :

- 1) - La photoionisation, qui permet d'atteindre, avec une grande souplesse et précision, les couches internes du cortège;
- 2) - L'ionisation par bombardement électronique, qui permet d'atteindre une précision analogue dans les couches externes de l'atome;
- 3) - L'ionisation par collisions atomiques, qui donne préférentiellement des lacunes dans les couches internes du cortège, mais avec un léger mélange de lacunes dans les couches externes.

Nous nous contenterons de rappeler brièvement les expériences de T.A. CARLSON et M.O. KRAUSE, car elles ont été systématiquement entreprises à Oak Ridge, pour étudier le problème du réarrangement électronique du cortège atomique, et que ce sont celles qui ont apporté les résultats les plus spectaculaires dans ce domaine. Le gaz monoatomique étudié est ionisé, dans la couche que l'on désire, par irradiation par des rayons X d'énergie appropriée.

Dans un premier montage (fig. 20), le spectromètre de charge mesurait les coïncidences entre les atomes ionisés du gaz et les électrons émis au cours de l'ionisation. Le faisceau de rayons X pénétrait dans la chambre d'ionisation à travers une fenêtre en Be de 25 μ d'épaisseur et traversait un système de fentes collimatrices qui assuraient sa formation et le débarrassaient des électrons secondaires. La région d'ionisation était définie comme un disque très fin situé dans le plan du faisceau et dont l'axe était commun avec ceux des deux détecteurs placés perpendiculairement à ce plan et le regardant. Des plaques parallèles au plan du faisceau, percées d'ouvertures circulaires, coaxiales au disque source, permettaient d'arracher les ions qui s'y formaient et de les diriger, après accélération, vers la première dynode du multiplicateur PM-2 situé à 3 mètres de distance; quant aux électrons correspondants, ils venaient frapper la première dynode du multiplicateur PM-1, placé tout près de la région d'ionisation. La charge $\underline{n}$ d'un ion était déduite de son temps de vol $\underline{\tau}$ par la relation :

$$\tau = f \left(\frac{M}{n} \right)^{1/2}$$

où M est la masse de l'ion et f une constante de l'appareil, tenant compte de la géométrie et des tensions appliquées pour accélérer les ions.

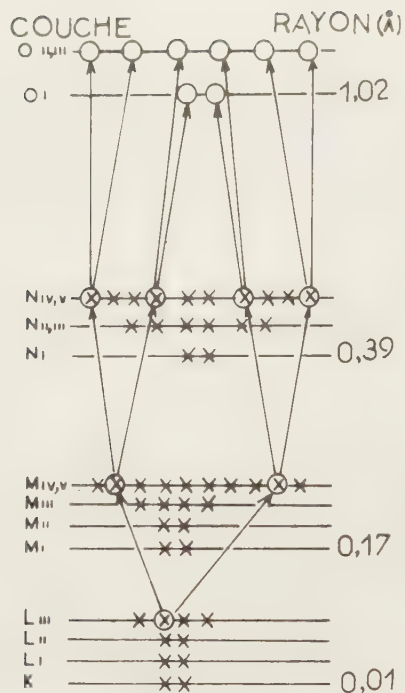


Fig. 19 : Exemple de cascade de lacunes déclenchée dans I⁻ par une lacune primaire L_{III}. Les X représentent les électrons liés; les O, les lacunes, et les (X), les cases dans lesquelles une lacune a été formée, puis comblée par un processus Auger ultérieur. (Fig. extraite de la réf. {Ca 66}).

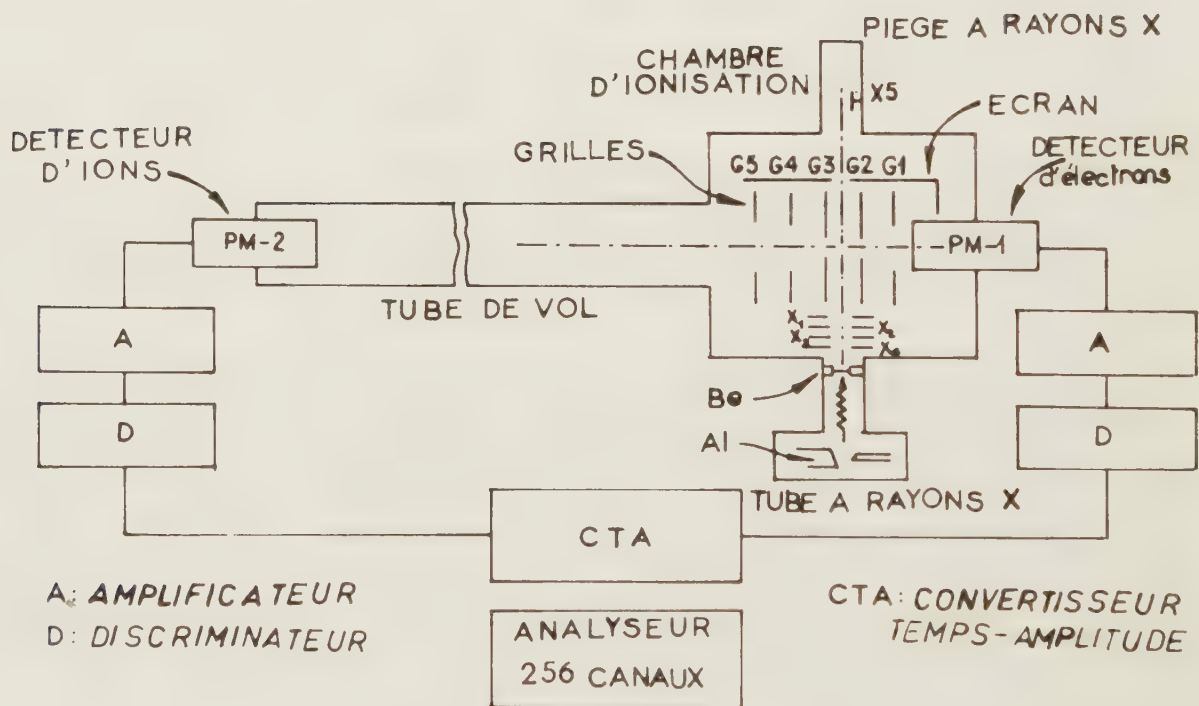


Fig. 20 : Schéma du spectromètre de charge, à temps de vol, d'Oak Ridge. (Fig. extraite de la réf. {Kr 64}).

Cette méthode permettait d'utiliser un rayonnement X continu et fournissait un excellent rapport signal/bruit, même lorsque le taux d'ionisation était inférieur à 6 événements par minute; d'autre part, elle donnait, en une seule et même expérience, le spectre de charge tout entier, ce qui éliminait les erreurs dues aux fluctuations et aux dérives dans le flux du rayonnement X, dans la pression et dans le bruit de fond. Cependant, elle avait l'inconvénient d'être trop sensible à la différence d'efficacité des multiplicateurs aux électrons et aux ions. Par suite, la probabilité pour détecter un ion dépendait de celle de détecter l'un des électrons correspondants.

Un autre inconvénient de cette méthode est l'analyse simultanée, en plus des ions étudiés, de toutes sortes d'ions étrangers dus aux molécules légères du gaz résiduel (vapeur d'eau, azote, oxygène) ou aux vapeurs de mercure.

Aussi, les expérimentateurs d'Oak Ridge ont-ils préféré abandonner la méthode des coïncidences et détecter et analyser les ions sans référence aux électrons qui les accompagnent. L'analyseur est du type magnétique; le volume source (fig. 21), en avant de cet analyseur, est défini par deux plaques-percées d'ouvertures circulaires - perpendiculaires à la trajectoire des ions dans l'analyseur. Le gaz à étudier, qui se trouve entre ces plaques, est irradié par un large faisceau de rayons X. Les ions formés sont extraits du volume source par une légère différence de potentiel entre les deux plaques (quelques dizaines de volts à 200 volts), puis accélérés par une tension de quelques milliers de volts et dirigés vers l'analyseur magnétique et de là vers le multiplicateur.

Dans ce nouveau montage, il peut également y avoir des différences d'efficacité dans la collection des ions, en fonction de leur charge, par suite de l'effet de focalisation du système d'extraction (grilles à différents potentiels successifs). Il faut cependant remarquer que l'effet est très faible et peut souvent être négligé.

EVALUATION EMPIRIQUE DE LA CHARGE MOYENNE :

De toutes les études expérimentales qui ont été organisées et réalisées à Oak Ridge, sur la plupart des gaz rares, il n'a pas encore été possible de dégager de lois qui s'appliquent à toutes les cascades de lacunes, quel que soit le nombre atomique de l'atome concerné et la profondeur de la lacune primaire. Mais on peut, d'ores et déjà, indiquer quelques règles empiriques dans certains cas particuliers.

1) - La charge qui résulte d'une lacune primaire L ou M , dans le cortège d'un atome de gaz rare, est égale, en moyenne, au nombre de sous-couches électroniques de cet atome à partir de la lacune primaire (celle-ci comprise), en ne comptant que pour 1 la couche de valence.

2) - Pour évaluer la charge moyenne dans le cas d'une lacune primaire K , il faut d'abord, avant d'appliquer la règle 1), transférer une fraction de la lacune K dans les sous-couches $L_{II,III}$ et une fraction de celles-ci en $M_{IV,V}$, en tenant compte des rendements de fluorescence.

3) - La charge moyenne varie presque linéairement avec Z pour $Z > 36$; ceci permet de la connaître aisément par interpolation ou extrapolation pour un atome autre qu'un gaz rare.

4) - Pour $Z < 36$, la charge moyenne varie par paliers : elle reste indépendante de Z pour $13 < Z < 18$ et $21 < Z < 30$ et subit une variation brusque lorsque Z passe de 10 à 13, de 18 à 21 et de 30 à 36.

L'ensemble de ces résultats est illustré par la fig. 22. Il est à souligner qu'ils ne concernent que la réorganisation dans un atome de nombre atomique Z , initialement ionisé dans une couche autre que la couche de valence et dont le cortège possède $Z-1$ électrons liés. Si la réorganisation a lieu dans un atome déjà dépouillé d'un certain nombre de ses électrons extérieurs, il est à prévoir qu'elle se soldera, en moyenne, par une ionisation moins importante, du fait de l'impossibilité de réalisation de toutes les transitions qui mettent en jeu ces électrons extérieurs manquants et par suite, également, de la modification du champ central par effet d'écran; le bilan de cette ionisation s'ajoutera à la charge initiale.

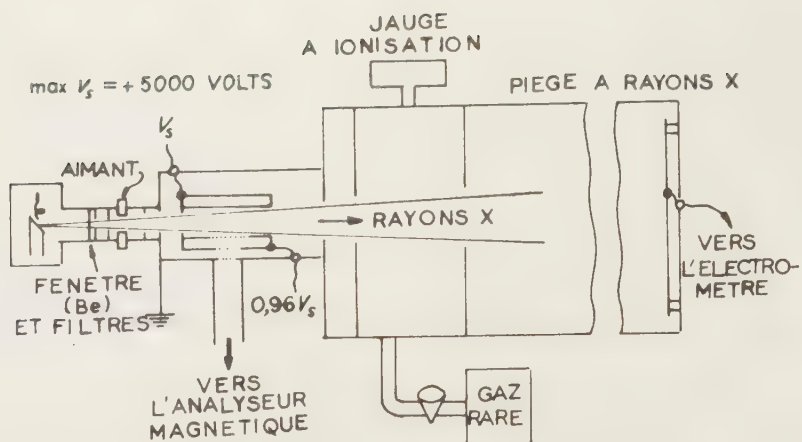


Fig. 21 : Volume source, pour l'étude de la distribution de charges des ions produits par irradiation X. (Fig. extraite de la réf. {Ca 65}).

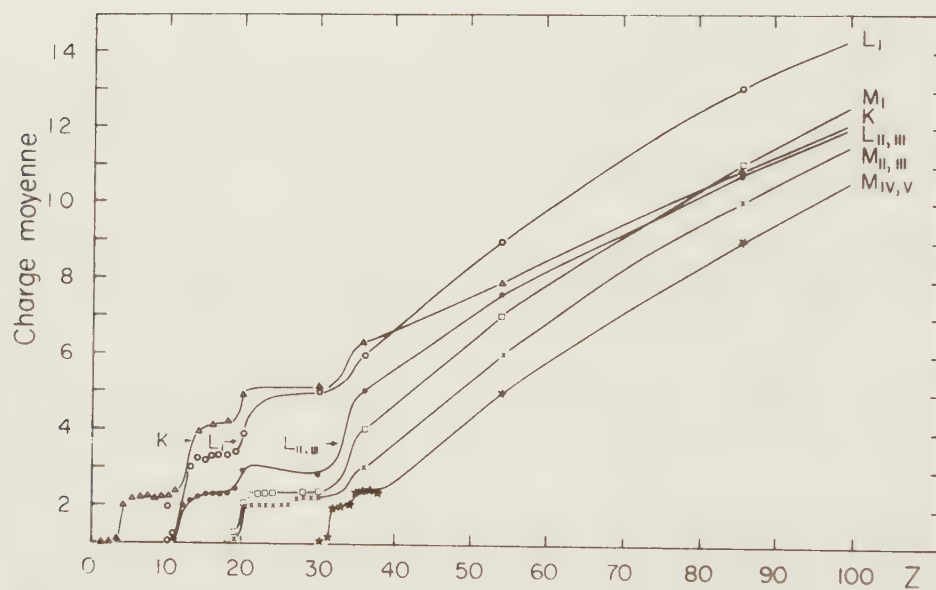


Fig. 22 : Charge moyenne qui résulte d'une lacune primaire K, L ou M, en fonction du numéro atomique. (Fig. extraite de la réf. {Hu 66}).

T R O I S I E M E P A R T I E

- -
o

APPAREILLAGE ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

Le schéma général de l'ensemble expérimental est donné par la figure 23.

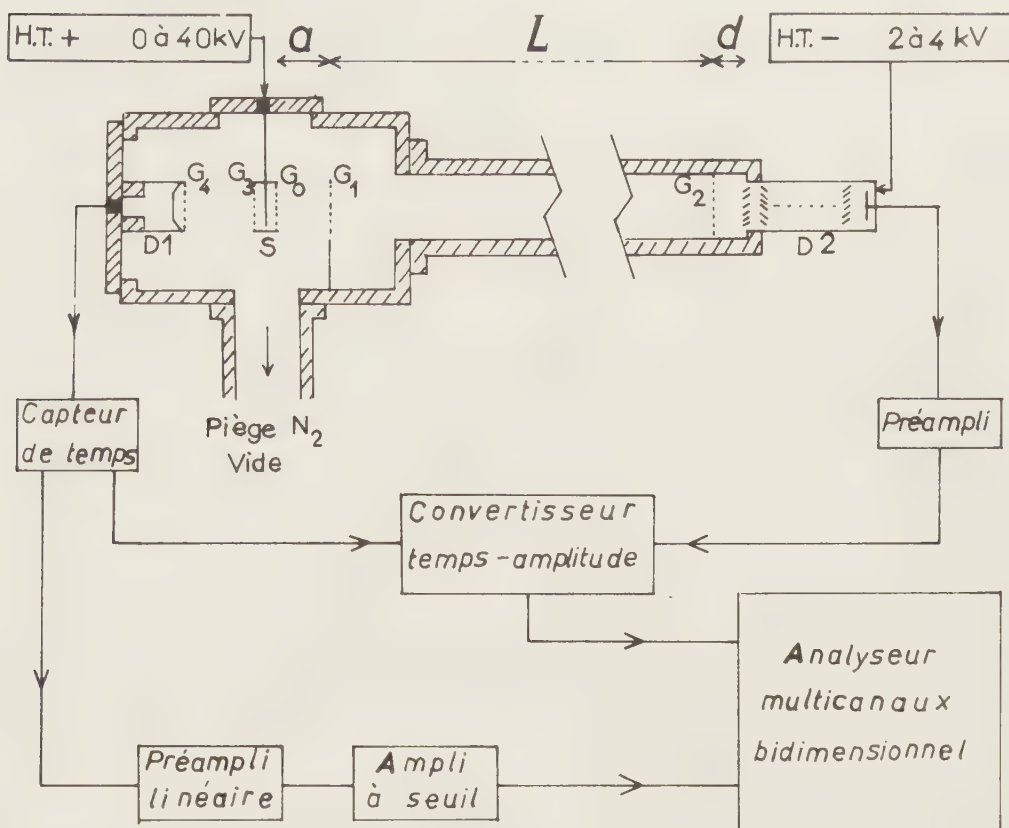


Fig. 23 - Diagramme d'ensemble du dispositif expérimental.

LE VIDE :

Dès le début de nos expériences, nous nous sommes attachés à réaliser un bon vide. Nous avons donc monté une installation très soignée, qui nous a donné toute satisfaction par la suite, sans aucune défaillance. Cette installation comprenait :

- une pompe primaire à palettes, Beaudoin, à deux étages, $10\text{m}^3/\text{h}$;
- une pompe secondaire à diffusion de vapeur d'huile, Edwards, E02, à quatre étages, 150 l/s ;
- un baffle, Edwards, N5L2, 180 l/s ;
- un piège à azote liquide, Edwards, NTM4A, contenance $2,5\text{ l}$, autonomie 15h .

Le vide primaire était contrôlé par une jauge Sogev Pyrovac, et le vide secondaire par une jauge Sogev Ionivac.

Pour obtenir un vide de quelques 10^{-6} Tor, dans un tube de vol ayant 100 cm de longueur ($\phi = 90\text{ mm}$), il fallait moins d'une heure; au bout de quelques heures de pompage, le vide était inférieur à 10^{-6} Tor.

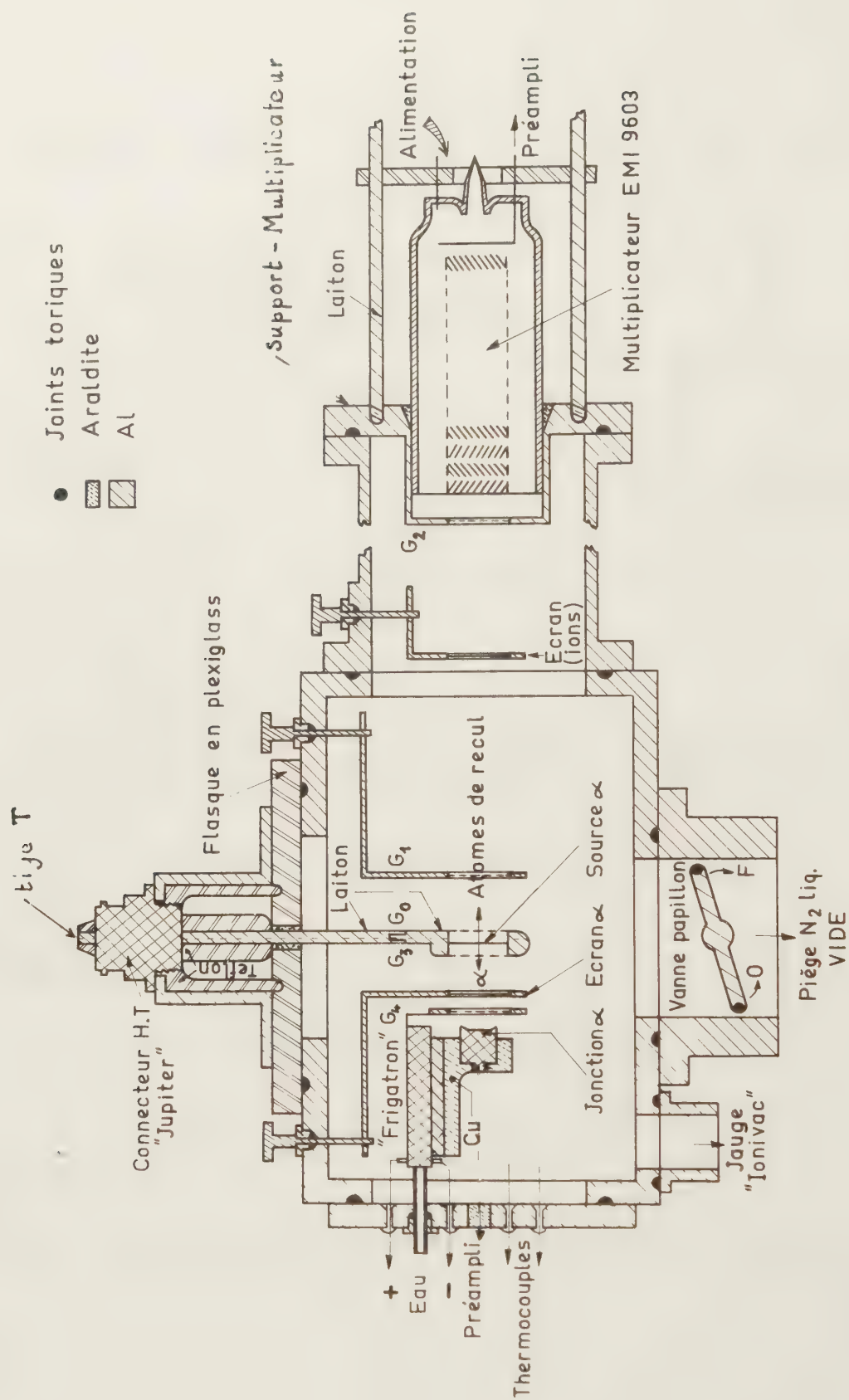


Fig. 24 - Schéma du dispositif de détection et d'accélération.

HAUTE TENSION :

Nous avons utilisé un générateur SAMES, à redresseur, R 45 07; il nous a permis d'obtenir les hautes tensions de 0 à 40 kV dont nous avions besoin, avec une stabilité suffisante. Nous avons contrôlé la tension au moyen d'un voltmètre spécialement monté, celui d'origine ne permettant qu'une lecture grossière, de 5 en 5 kV.

L'arrivée de la haute tension, dans la chambre à vide, nous a posé quelques problèmes de claquage. Nous les avons résolus, d'une part, en utilisant une prise LEMO "Jupiter", d'autre part, en noyant dans l'araldite, la tige T, du côté extérieur à la chambre à vide (fig. 24).

Nous avons également rencontré des difficultés pour éliminer les claquages entre les grilles G_0 et G_1 , dans la chambre à vide. Il nous avait d'abord semblé que la meilleure solution, alliant robustesse, précision, maniabilité et isolation électrique, consistait à placer ces grilles à l'intérieur d'un cylindre creux, et à interposer entre elles des anneaux de téflon. Mais nous avons constaté qu'une telle structure, même lorsque tous ses éléments sont dans un parfait état de propreté et ne présentent aucune aspérité, ne permet pas de dépasser 15 kV; des étincelles de claquage apparaissent tôt ou tard (au bout de quelques heures au maximum), le long de la surface du téflon, et détruisent la structure, quel que soit le mode d'empilement des anneaux de téflon et des grilles, et le soin apporté à leur usinage. Nous avons alors, tout simplement, mis en regard l'une de l'autre les deux grilles G_0 et G_1 , dans le vide, sans aucun isolant supplémentaire; la robustesse de l'ensemble était assurée, d'une part, en plaçant G_0 dans une monture annulaire vissée sur la tige T (arrivée de la haute tension), d'autre part, en fixant G_1 au bout d'un bras porté par la bâti de la chambre (fig. 24). Dans ces conditions, une d.d.p. de 30 kV, entre deux grilles distantes de 1 cm, peut être maintenue pendant des semaines, sans le moindre claquage, lorsque le vide est de 10^{-6} Tor.

Les grilles que nous avons utilisées, pour définir la région d'accélération des atomes de recul ou les divers plans de référence de potentiel, nous ont été fournies par la C.S.F.; elles sont constituées par un grillage en Ni - obtenu par électroforming - ayant 0,5 mm de pas, une épaisseur de 8μ et une transparence d'environ 95%; leur diamètre hors tout est de 20 mm, et la couronne pleine de 2 mm.

DETECTEUR α :

Au début de nos mesures, nous avons monté un ensemble électronique à lampes, ORTEC - préamplificateur 103, amplificateur à seuil 201, capteur de temps 260 et 261 - et utilisé des jonctions à barrière de surface, de 50 mm², également fournies par ORTEC. Cet ensemble nous permettait une résolution d'environ 30 keV, pour les α de 5 à 6 MeV ayant traversé le support-source; nous pouvions améliorer la résolution, soit en utilisant des jonctions de surface plus réduite (25 mm² par exemple et surtout 7 mm²), soit en refroidissant les jonctions, par effet PELTIER ("Frigatron", fig. 24). Cette résolution s'est avérée suffisante, dans la plupart de nos mesures.

Les impulsions délivrées par la jonction servaient à définir un temps, par l'intermédiaire du capteur décrit dans la section I-5, et une énergie, par l'intermédiaire d'un amplificateur linéaire (fig. 23).

MULTIPLICATEUR D'ELECTRONS :

L'enveloppe des multiplicateurs EMI 9603 était sectionnée à la hauteur de la première dynode, puis collée à l'araldite, à l'intérieur d'un support cylindrique (fig. 24) adaptable sur le tube de vol; trois longues tiges, vissées dans ce support, permettaient de fixer tous les composants électroniques destinés à l'alimentation du multiplicateur et à la transmission des impulsions vers le convertisseur temps-amplitude. L'alimentation était assurée par une haute tension stabilisée, 5 kV.

Lorsque le multiplicateur est neuf, il suffit d'utiliser une tension de fonc-

tionnement voisine de 2 kV; à mesure qu'il vieillit, il faut augmenter la tension; au delà de 3 kV, il vaut mieux changer de tube multiplicateur, car le bruit de fond devient non négligeable.

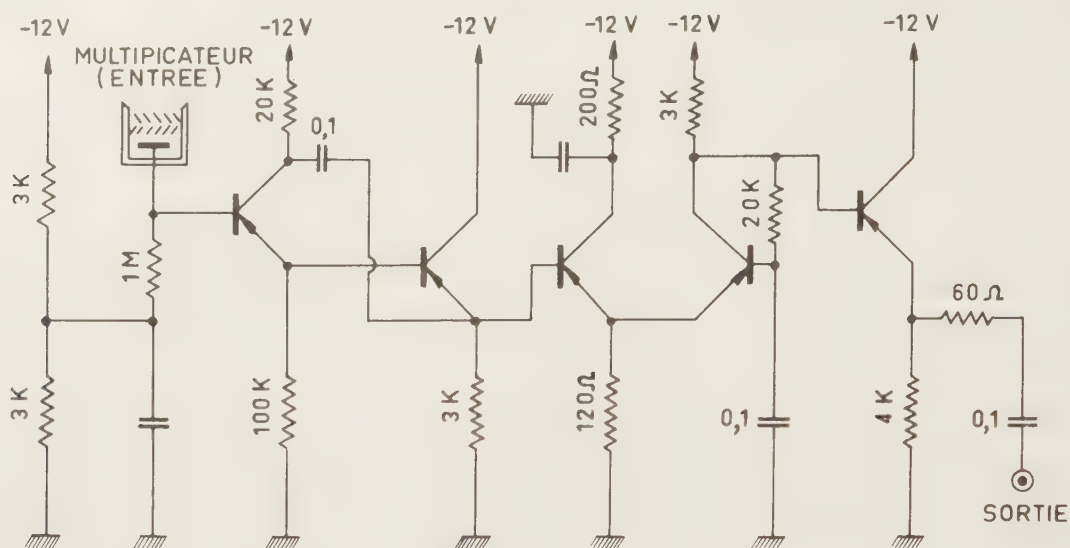


Fig. 25 - Schéma du préamplificateur P.M. Tous les transistors utilisés sont du type 2N 3906 PNP.

La détection d'un atome de recul, par le multiplicateur, se traduit par une impulsion, d'amplitude voisine de 1 mV, aux bornes d'une résistance de 1 MΩ (fig. 25); cette impulsion attaque un montage à transistors du type "cathode asservie", suivi d'un étage amplificateur, qui permet une adaptation correcte au câble de liaison avec le convertisseur temps-amplitude (C.T.A.).

CONVERTISSEUR TEMPS-AMPLITUDE :

La figure 26 donne le schéma du C.T.A. linéaire que nous avons utilisé; il a été réalisé au laboratoire, par Michel LEBLANC.

Les entrées des deux voies A et B (section I-5) se font sur deux monostables, par l'intermédiaire des deux tores I et II; on obtient deux impulsions rectangulaires, décalées dans le temps, dont la largeur est définie par la charge, à courant constant, de C_1 pour le monostable I et de C_2 pour le monostable II. Les impulsions A et B attaquent un circuit de coïncidence, constitué par les deux transistors saturés T_4 et T_5 ; pendant le recouvrement des impulsions A et B, ces deux transistors restent bloqués, ce qui a pour effet de charger, à courant constant, par l'intermédiaire du transistor T_6 , le condensateur C_3 (ou l'un des autres condensateurs C_4 ou C_5 , selon la pente de conversion choisie). Quand l'un des deux transistors T_4 ou T_5 reconduit, le point commun de leurs collecteurs est rapidement ramené au potentiel de la masse; la charge de la capacité d'intégration C_3 apparaît alors aux bornes de la diode T_7 ; l'impulsion ainsi créée est transmise vers l'analyseur multicanaux, par l'intermédiaire de deux transistors émetteurs suiveurs en cascade.

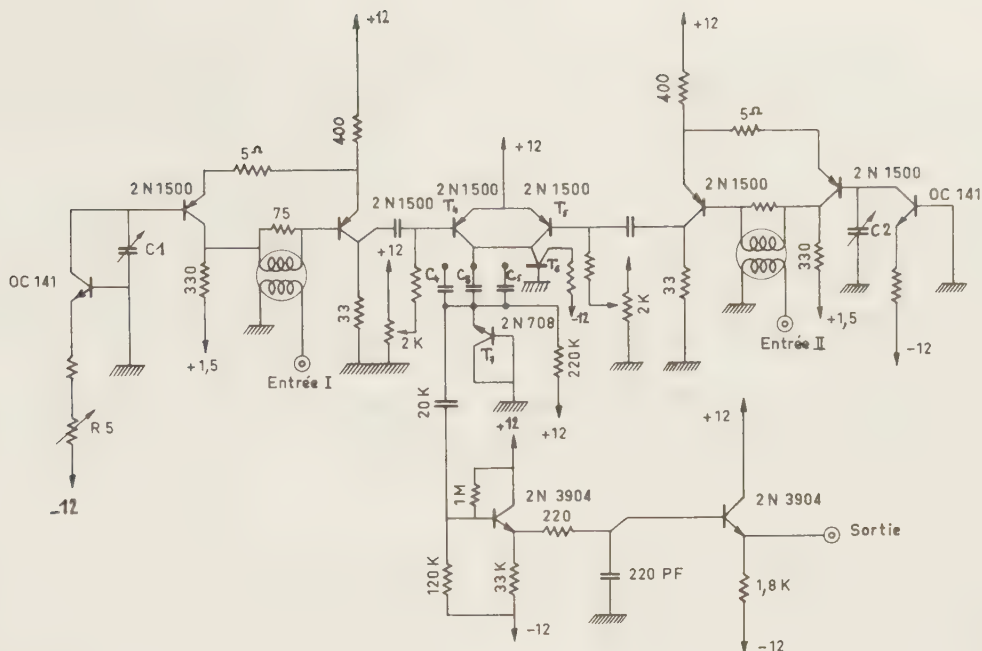


Fig. 26 - Schéma du convertisseur temps-amplitude.

ENREGISTREMENT DES SPECTRES DE TEMPS DE VOL :

On peut analyser directement les impulsions délivrées par le C.T.A.; on a alors la distribution des temps de vol des atomes de recul, pour l'ensemble des particules α mises en jeu dans la désintégration de la source étudiée. Mais dès que l'on désire la distribution des temps de vol pour une énergie E_α bien déterminée, il faut réaliser

l'analyse des atomes de recul en coïncidence avec les particules α correspondantes. Dans ce cas, les impulsions délivrées par le C.T.A. sont admises dans l'analyseur multicanaux par l'intermédiaire d'une porte, commandée par la voie α lente, fixée sur E_α . On peut également, si l'on dispose d'un analyseur multiparamétrique, fixer la voie α sur plusieurs raies α , au-dessus d'un seuil donné. Au cours de notre première étude, celle du dépôt actif du thoron, nous avons utilisé un analyseur 512 canaux (LABEN); plus tard, nous avons effectué toutes nos mesures avec des analyseurs 400 canaux ou 4096 canaux (INTERTECHNIQUE).

Pour interpréter les spectres obtenus et graduer en temps de vol l'axe définissant les numéros des canaux, il est nécessaire de noter, pour chaque expérience, la pente de conversion du C.T.A. (largeur T_B , fig. 12) et la pente de conversion de l'analyseur. Il est utile également de noter le retard (largeur T_A , fig. 12) introduit dans la voie α , car, par suite du grand écart (quelques μs) entre le temps de vol des atomes neutres et celui des atomes de charge 30, il est impossible de faire une analyse détaillée de toutes les charges à la fois et l'on est amené à faire l'analyse de l'ensemble des charges, plage par plage; il est alors indispensable de pouvoir identifier la charge qui se trouve au début du spectre.

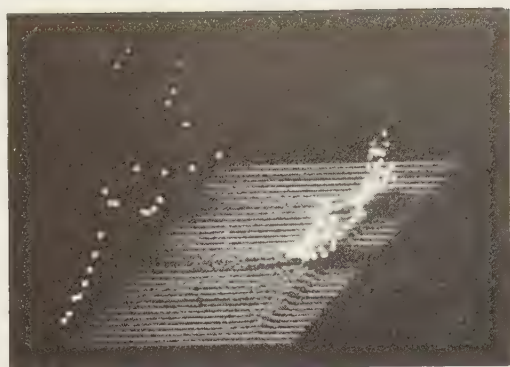
Le bloc d'analyse étant linéaire, il suffit de l'étalonner, pour une pente de conversion donnée, au moyen de deux ou trois temps de vol bien connus. Cela est particulièrement facile en utilisant le temps de vol, sans accélération, des atomes de recul ^{208}Tl et ^{208}Pb du dépôt actif du thoron; leurs vitesses respectives sont en effet très différentes : $3,3 \cdot 10^7$ cm/s et $4 \cdot 10^7$ cm/s. A défaut de dépôt actif, il est toujours possible de faire un étalonnage précis, à partir de la position des pics correspondant aux charges 0 et 1 ou 0 et 2.

Avec les paramètres dont nous disposons, tant sur le C.T.A. que sur les analyseurs, nous avons utilisé des sensibilités s'échelonnant depuis 1ns/canal jusqu'à 50ns/canal. Les spectres de temps de vol étaient, en général, étalés sur 100 ou 128 canaux, quelquefois sur 256 canaux et assez rarement sur 400 canaux.

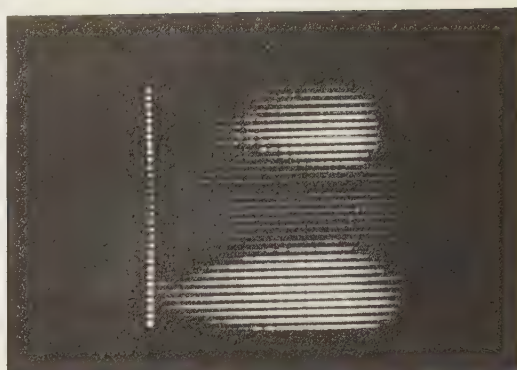
Pour donner un ordre de grandeur, nous devons préciser qu'une sensibilité de 2ns/canal correspond à une analyse sur 10 canaux du pic relatif à la charge 30, lorsque la base de vol est de 1m, la tension accélératrice de 20 kV, pour des atomes de recul ^{219}Rn ($E_{\alpha} = 5,6 \text{ MeV}$); dans les mêmes conditions, le temps de vol des atomes neutres est de 2 μs inférieur, c'est-à-dire se trouve à 1000 canaux de la charge 30, et est étalé sur 150 canaux environ. On voit donc que le choix de 2ns/canal est très mal adapté à l'analyse des charges peu élevées et exigerait plus de mille canaux pour chaque point du spectre α .

Afin d'éviter ces inconvénients de l'analyse linéaire, on pourrait adopter un C.T.A. non linéaire, à faible pente de conversion (20ns/canal par exemple) pour les charges 0 et 1, et à grande pente de conversion (1ns/canal) pour les charges supérieures à 30.

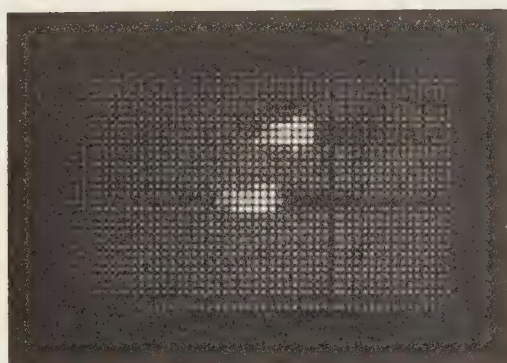
PLANCHE I



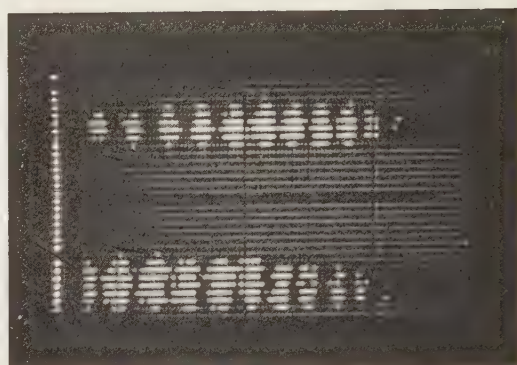
(a)



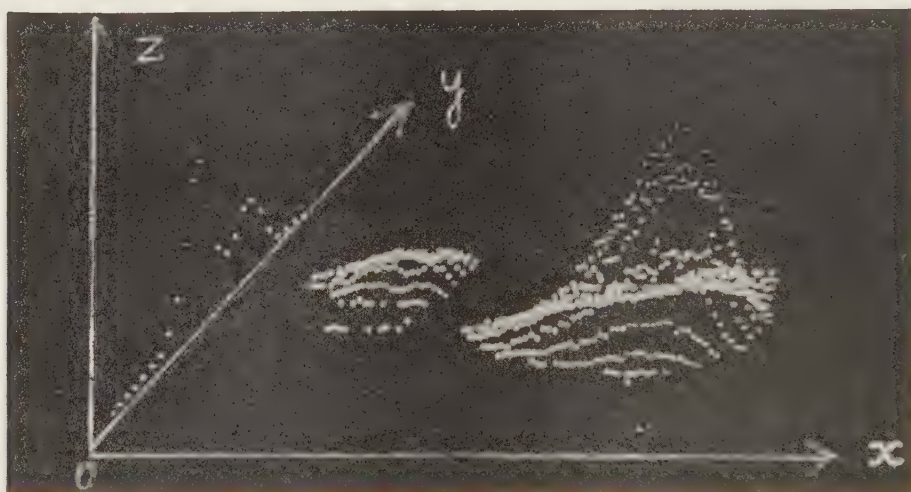
(c)



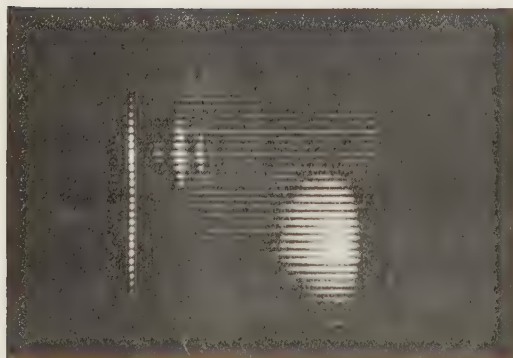
(b)



(d)



(e)



(f)



(g)

Planche I - Clichés obtenus à partir de l'oscilloscope de l'élément de visualisation RG96 (INTERTECHNIQUE) montrant le nombre de coïncidences (axe Oz) en fonction du temps de vol des atomes de recul (axe Ox) et de l'énergie α (axe Oy). Les clichés (a) et (e) donnent une vue en perspective ; (b), (c), (d) et (f) donnent une projection sur le plan Oxy ; (g) donne une douzaine de coupes par des plans $y = i$. Suivant l'axe Ox, plus x est grand, plus la charge est élevée et plus le temps de vol est court.

(a) et (b) : atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ - Sans accélération ; base de vol 161,5 cm ; coïncidences avec les α de $\sim 5,7$ MeV (pic au premier plan) et de ~ 6 MeV.

(c) et (d) : atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ - Champ électrique accélérateur, 10 kV/cm ; base de vol, 3 mètres ; coïncidences avec les α de $\sim 5,7$ MeV (groupe au premier plan) et de ~ 6 MeV.

(e) : atomes $^{208}\text{Tl}^{n+}$ - Tension accélératrice, 10 kV ; base de vol, 58 cm ; coïncidences avec les α qui alimentent le niveau à 40 keV (groupe le plus intense et le plus rapide) et les α qui vont au fondamental (groupe de charges 0 et 1).

(f) et (g) : atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ - Tension accélératrice 15 kV ; base de vol, 161,5 cm. En parcourant les clichés de haut en bas, on voit comment varie la distribution de charges lorsque l'énergie α passe de 6,037 MeV (α qui vont au fondamental) à 5,976 MeV (α qui alimentent le niveau à 61,5 keV).

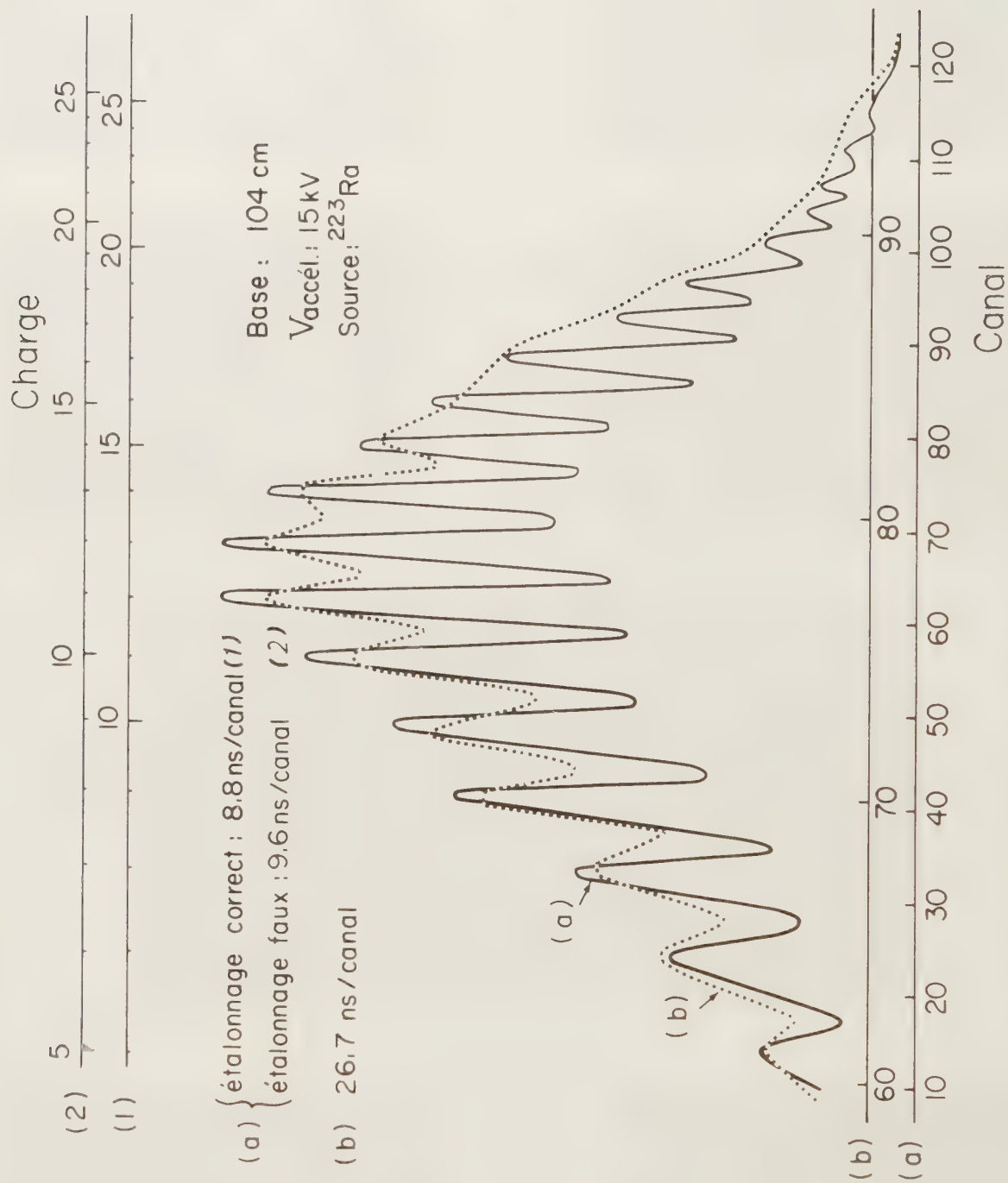


Fig. 27 - Influence de la sensibilité du bloc d'analyse sur la forme des spectres de temps de vol. Atomes $^{219}\text{Rn}^{+}$ en coïncidence avec les particules α de 5,605 MeV.

III-2 : S P E C T R E S D E T E M P S D E V O L

Avant d'exposer les résultats propres à chaque isotope que nous avons étudié, nous allons souligner quelques propriétés générales des spectres de temps de vol, obtenus au cours de ce travail. Certaines de ces propriétés sont illustrées par des vues, prises en photographiant l'écran de l'oscilloscope de l'élément de visualisation RG 96 (INTERTECHNIQUE). Nous avons essentiellement utilisé trois présentations différentes des figures qui apparaissent sur l'écran :

- en perspective : nombre d'atomes (Oz), en fonction du temps de vol (Ox) et de l'énergie α (Oy) {Planche I, photographies a et e};
- en projection sur le plan Oxy : le nombre d'atomes donne alors une simple modulation d'intensité de la tache lumineuse {Planche I, photographies b, c, d et f};
- coupes suivant des plans $y=i$, où i est un entier compris entre 0 et 32 : ce sont des spectres de temps de vol pour des points donnés du spectre α {Planche I, photographie g}.

TEMPS DE VOL EN FONCTION DE L'ENERGIE α :

a/ SANS ACCELERATION : Sur la planche I, photographie a, on voit, suivant l'axe Oy, deux groupes de particules α émises par une source de ^{227}Th : le groupe d'énergie $\sim 5,7$ MeV (dans les 15 premiers canaux) et le groupe d'énergie ~ 6 MeV. On constate qu'il y correspond deux groupes d'atomes de recul (Planche I, photographies a et b) dont les temps de vol (axe Ox) diffèrent d'environ 5 canaux. Le pic des temps de vol se déplace donc d'un canal, dans les conditions actuelles d'analyse, pour une différence d'énergie α d'environ 70 keV (~ 800 eV par canal, pour les atomes de recul). Les conditions expérimentales dans lesquelles ces spectres ont été obtenus sont les suivantes : base de vol, 161 cm; pente de conversion, 27ns/canal; durée de l'expérience, 12 heures.

b/ AVEC ACCELERATION : La planche I, photographie d, montre une partie du spectre de charge des atomes de recul $^{223}\text{Ra}^{+}$, accélérés par une d.d.p. de 12 kV et ayant parcouru une base de 3 mètres. Les deux groupes sont en coïncidence respectivement avec les particules α de 5,7 et 6 MeV (de bas en haut, comme dans le cas des photographies a, b et c). On constate que les pics pour une charge donnée sont nettement décalés (d'une demi-douzaine de canaux, par exemple, au début du spectre) et que les sommets successifs du groupe le plus lent correspondent aux vallées du groupe rapide (en sorte qu'il serait impossible de séparer les charges si l'on ne faisait pas l'analyse bidimensionnelle des atomes relatifs aux deux groupes α).

CONFORMITE DES SPECTRES :

Il est possible d'interpréter les spectres de charge, même lorsque les conditions d'analyse sont sommaires et les pics non résolus. La figure 27 montre deux spectres de charge, normalisés en abscisse et en ordonnée pour les rendre plus faciles à comparer, dont l'un, a, est étalé sur trois fois plus de canaux que l'autre, b; on voit que ce dernier enveloppe le premier : les vallées entre les pics diminuent ou disparaissent, mais la hauteur des pics est peu modifiée ($(h_a - h_b)/h_a < 10\%$). Cette similitude des spectres de charge permet de lever l'indétermination qui peut parfois subsister quant à l'identification des pics, lorsqu'une partie seulement du spectre est visible sur la totalité des 128 ou 256 canaux (20 pics, par exemple); plusieurs étalonnages différents sont en effet alors plausibles pour ces 20 pics pris isolément, comme le montre la figure 27; l'étalonnage correct est celui qui donne une distribution superposable à celle obtenue sans équivoque d'identification (à partir d'un spectre où figure la charge zéro, par exemple).

LARGEUR ET ECARTEMENT DES PICS :

Les spectres 1 et 2 de la figure 28 montrent deux distributions des temps

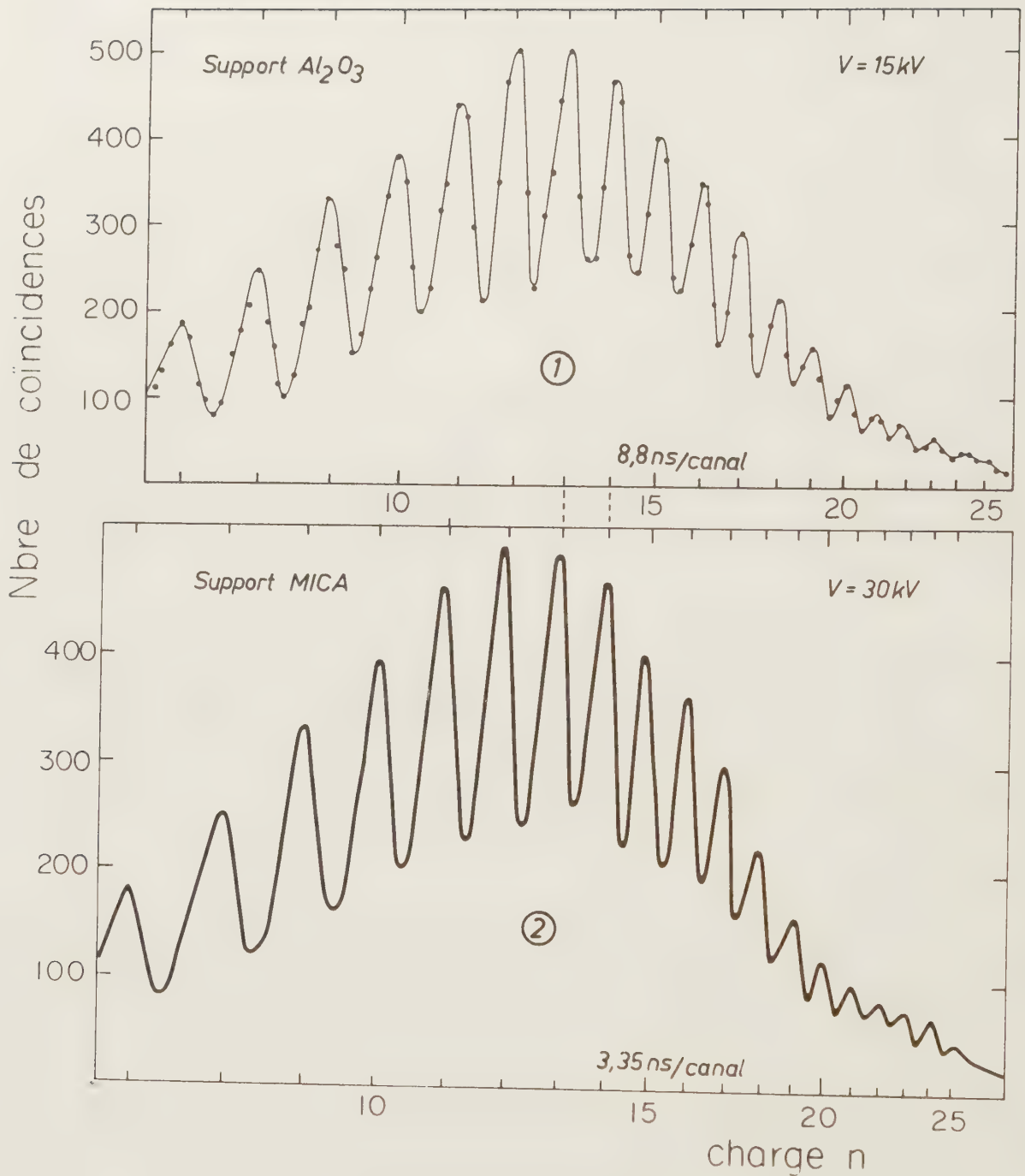


Fig. 28 - Influence de la tension accélératrice V sur la largeur des raies et l'écartement des pics.

de vol des atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$ accélérés respectivement à 15 et à 30 kV. On constate que le rapport :

$$\left(\frac{\overline{\text{écart}}_{30}}{\overline{\text{écart}}_{15}}\right)_{n,n+1}$$

des écarts respectifs entre pics adjacents n et $n+1$, est supérieur à l'unité pour $n < 13$ et inférieur à l'unité pour $n > 14$. C'est bien ce que permet de prévoir le calcul du temps de vol (section I-3).

Quant à la largeur à mi-hauteur des pics, elle est sensiblement la même dans les deux cas et diminue de moitié entre la charge 10 et 20. Cette diminution, dans le rapport 1/2, est conforme au calcul (section I-3); mais ce même calcul laisse prévoir une largeur à mi-hauteur, deux fois plus petite à 30 kV qu'à 15 kV, ce qui, visiblement, n'est pas confirmé par l'expérience.

DECOMPOSITION DES SPECTRES :

La figure 29 donne un exemple de décomposition de spectre de charge; il s'agit d'atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$ en coïncidence avec les α de 5,605 MeV : base de vol, 244 cm; tension accélératrice, 12 kV; sensibilité du bloc d'analyse, 26,7ns/canal; durée de l'expérience, 90 heures.

Pour faire cette décomposition, nous avons adopté comme raie étalon, une raie ayant les caractéristiques décrites dans la section I-4 (surface de la traînée de basse énergie égale au tiers de la surface totale de la raie). Nous avons admis, d'autre part, que la largeur à mi-hauteur de la raie type, variait d'une charge à l'autre suivant la loi établie dans cette même section.

Le résultat de la décomposition ainsi réalisée est consigné dans la colonne 5 du tableau VII. Dans les colonnes 2, 3 et 4, nous avons porté : la hauteur des pics (après soustraction du fond), la largeur à mi-hauteur, théorique, et le produit de ces deux quantités. On constate que les surfaces calculées (colonne 4) sont du même ordre de grandeur que les surfaces obtenues par décomposition (colonne 5).

Charge	Hauteur du pic	Largeur théorique du pic	Surface calculée	Surface mesurée (fig. 29)
6	10	4,43	44,3	44
7	26	4,01	104	102
8	39	3,64	142	146
9	50	3,33	167	162
10	66	3,06	202	203
11	79	2,83	223	213
12	90	2,62	236	236
13	88	2,44	214	223
14	76	2,28	173	180
15	68	2,13	145	155
16	64	2,00	128	137
17	56	1,89	106	121
18	35	1,78	62,5	68
19	26	1,68	43,7	48
20	16	1,60	25,6	28

Tableau VII
Intensité (unités arbitraires) des raies du spectre de charge des atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$ en coïncidence avec les α de 5,605 MeV. Dans la colonne 4 figure l'intensité calculée et dans la colonne 5 l'intensité mesurée; le calcul est basé sur la hauteur des pics et une largeur théorique (section I-3, fig.8); la mesure est obtenue par décomposition du spectre de charge (fig. 29) à partir d'une forme de raie étalon expérimentale (fig.10) et la même largeur théorique que celle utilisée pour le calcul.

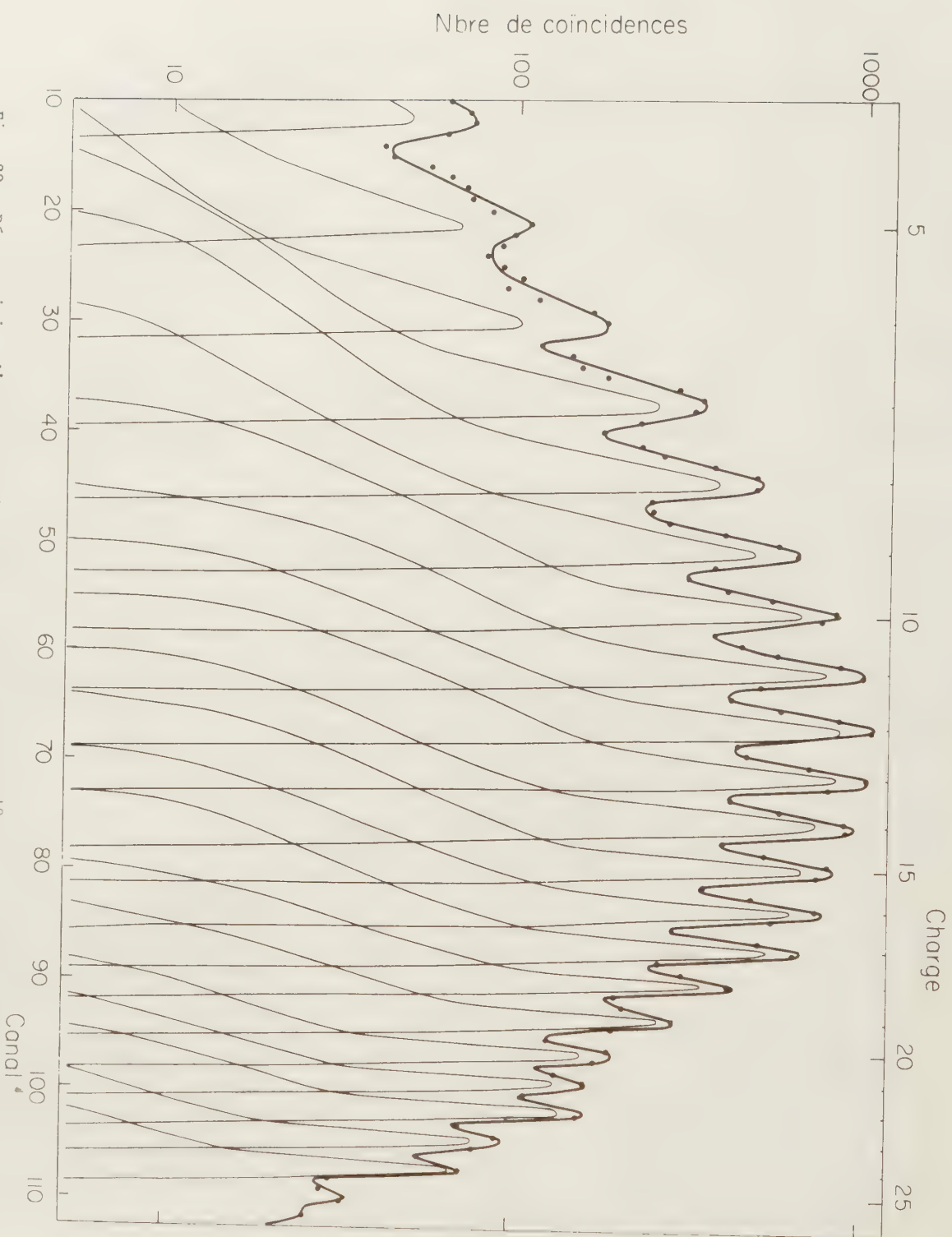


Fig. 29 - Décomposition d'un spectre de charge. Atomes de recul $^{19}\text{Kn}^+$ en coïncidence avec les particules α de 5,605 MeV ; base de vol, 244 cm ; tension accélératrice, 12 kV ; sensibilité du bloc d'analyse, 26,7 ns/canal ; durée de l'expérience, 90 h.

Ainsi donc, la décomposition apparaît comme inutile; il suffit de lui substituer un simple calcul, dans lequel la hauteur des pics est la donnée expérimentale de base. D'ailleurs, la connaissance de la surface des pics, en elle-même, ne présente qu'un intérêt très relatif; il subsiste toujours d'autres corrections à évaluer (section I-6 et 7) pour passer des intensités expérimentales aux intensités absolues. Aussi, nous sommes-nous contentés de relever la hauteur des pics sur les spectres obtenus, après soustraction d'un fond plus grand du côté des basses charges (inférieures à la charge moyenne) que du côté des charges élevées (fig. 34).

L'important, en fait, pour nous, était de comparer, dans des conditions de vol et d'analyse identiques, des distributions de charges correspondant à des bilans d'ionisation différents. La méthode que nous venons d'exposer nous permettait cette comparaison de façon simple et directe. Nous nous sommes d'autant plus limités à cette méthode qu'elle nous donnait des résultats analogues à ceux publiés par d'autres auteurs (fig. 30), antérieurement à notre première étude {Pe 66}, par PLEASANTON et SNELL {Pl 57}, pour le xénon, et postérieurement, par CARLSON et al. {Hu 66}, pour le mercure, et par GUNTER et al. {Gu 66}, pour le radium 222.

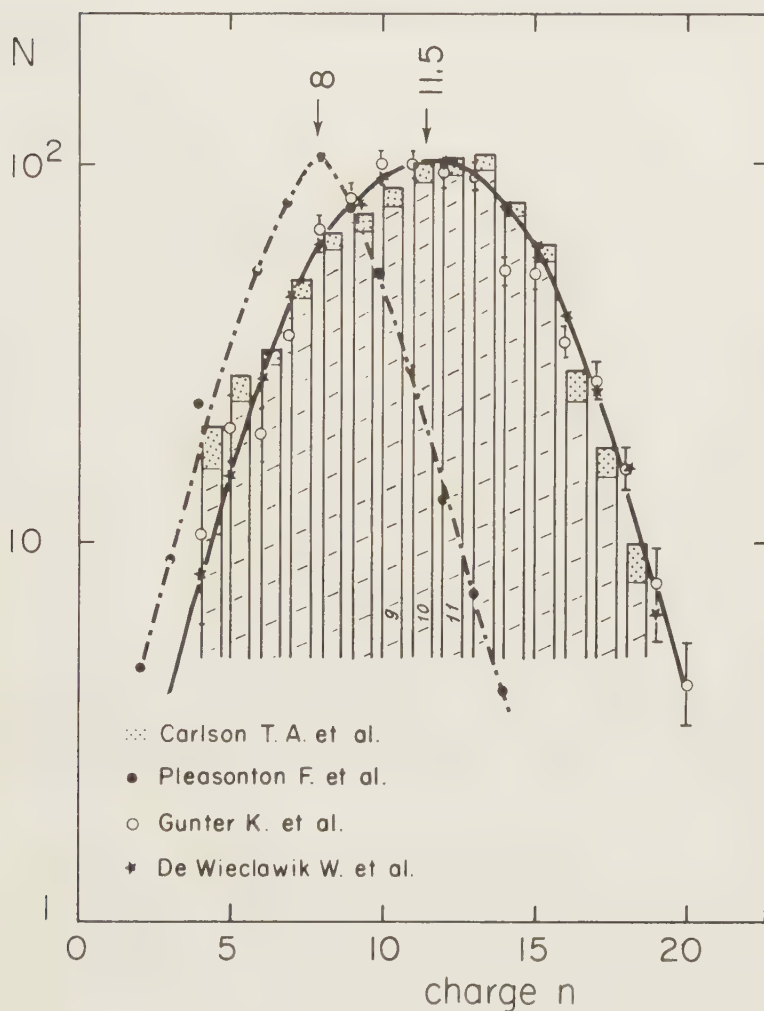


Fig. 30 - Distribution des charges qui résultent de la réorganisation du cortège à la suite de l'apparition brusque d'une lacune dans une couche profonde K, L ou M. Les données expérimentales sont extraites des références suivantes : {Pl 57}, {Hu 66}, {Pe 66} et {Gu 66}; elles concernent respectivement les atomes ^{131}Xe , $^{80}\text{Hg}^{n+}$, $^{208}\text{Tl}^{n+}$ et $^{222}\text{Rn}^{n+}$. La distribution de charges des atomes Hg^{n+} , centrée sur 10, a été décalée d'une unité et demie par rapport à la graduation adoptée pour les autres distributions.

III-3 : DÉPÔT ACTIF DU THORON

Le dépôt actif du thoron est constitué de quatre radioéléments en filiation (fig. 31a), parmi lesquels se trouvent deux émetteurs α : $^{212}_{84}\text{Po}$ et $^{212}_{83}\text{Bi}$, dont les activités sont pratiquement dans le rapport d'embranchement β^-/α de ThC; leurs schémas de désintégration α sont reproduits, pour l'essentiel, sur les figures 31b et c.

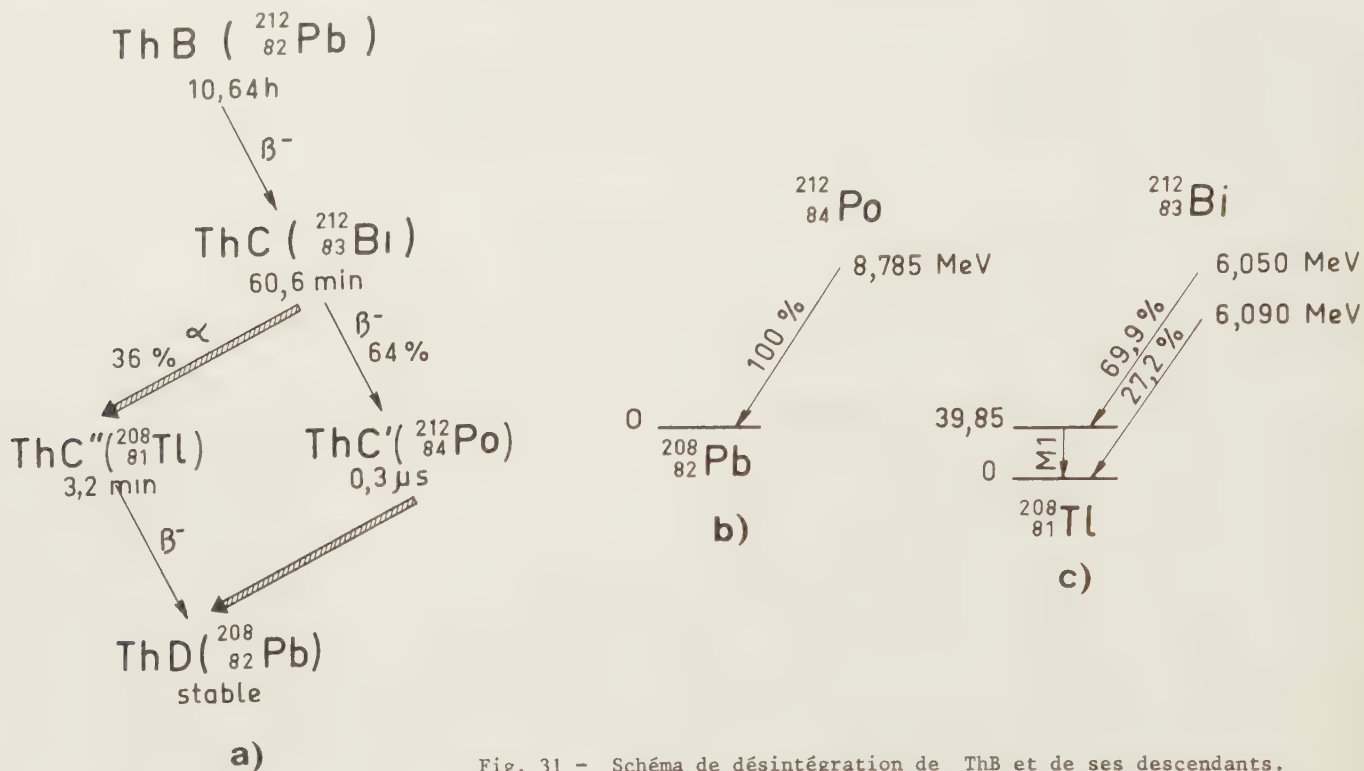


Fig. 31 - Schéma de désintégration de ThB et de ses descendants.

ATOMES DE RECOL Pb^{n+} :

D'après la figure 31b, la désintégration α de $^{212}_{84}\text{Po}$ laisse le noyau $^{208}_{82}\text{Pb}$ dans son état fondamental. L'ionisation de l'atome de recul Pb^{n+} ne peut donc résulter que des effets liés à la désintégration α elle-même (section II-1) - ces effets auraient lieu même si l'atome formait un système isolé - ou de divers effets de capture et de perte d'électrons, au niveau de la source (sections I-7), dus au fait que l'atome doit quitter celle-ci pour atteindre le multiplicateur.

Au cours de nos expériences, nous avons déterminé, soit l'énergie cinétique que possédaient les atomes de recul au moment où ils quittaient la source, soit leur charge.

La figure 32 montre le spectre de vitesse des atomes de recul Pb^{n+} et Tl^{n+} , obtenu en laissant voler ces atomes sur une base de 103 cm, sans les accélérer. On constate d'abord que les atomes Pb^{n+} sont environ 2,5 fois plus nombreux que les atomes Tl^{n+} , alors que le schéma de désintégration de ThC prévoit :

$$\left(\frac{\text{Pb}^{n+}}{\text{Tl}^{n+}} \right)_{\text{nuc}} = \frac{64}{36} \approx 1,8$$

Le fait qu'il y ait moins d'atomes Tl^{n+} que prévu, tient peut-être à une moindre efficacité de notre convertisseur temps-amplitude pour ces atomes : les impulsions qui leur correspondent peuvent être parfois au-dessous du seuil de sensibilité du monostable d'entrée.

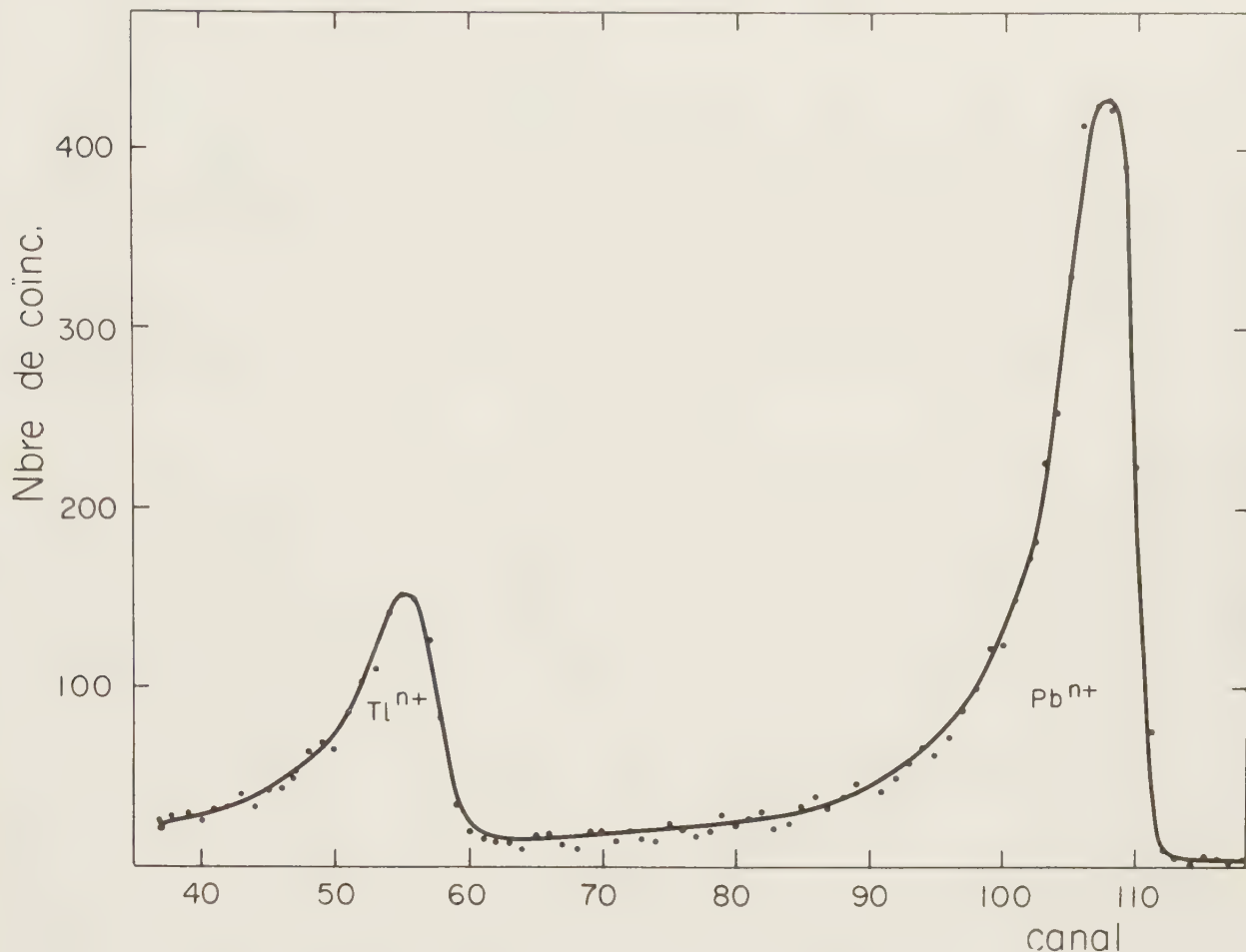


Fig. 32 - Spectre de vitesse des atomes ^{208}Tl et ^{208}Pb émis par une source de dépôt actif du thoron. Base de vol, 103 cm ; sensibilité du bloc d'analyse, 10 ns/canal.

On constate, d'autre part, que la largeur à mi-hauteur du pic Pb^{n+} est égale à 70 ns; on peut en déduire la dispersion de vitesse des atomes de recul lorsqu'ils quittent la source. En effet, le temps de vol t_0 , des atomes de recul qui traversent la base de vol avec la vitesse de recul maximum v_0 ($v_0 = 3,94 \cdot 10^7$ cm/s) est :

$$t_0 = \frac{103}{3,94 \cdot 10^7} = 26,1 \cdot 10^{-7} \text{ s} ;$$

la vitesse des atomes de recul qui arrivent avec un retard de $0,7 \cdot 10^{-7}$ s est donc :

$$v = \frac{103}{(26,1 + 0,7) \cdot 10^{-7}} = 3,84 \cdot 10^7 \text{ cm/s} ;$$

d'où une perte relative de vitesse :

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{10}{394} = 2,5\%$$

Il en résulte une dispersion d'énergie cinétique de recul, dans la source, donnée par :

$$\frac{\Delta E_r}{E_r} = 2 \frac{\Delta v}{v} = 5\%$$

Il s'agissait donc d'une assez bonne source (section I-3).

La figure 33 montre la distribution de charges des atomes Pb^{n+} que l'on obtient lorsqu'on les accélère, dès qu'ils ont quitté la source, entre deux électrodes planes distantes de 20 mm, entre lesquelles on maintient une différence de potentiel de 30 kV. On voit qu'il n'existe, en quantité mesurable pour nous, que des charges 0, 1 et 2; cette ionisation, peu profonde, est en accord avec celle que laisse prévoir la théorie de l'ébranlement du cortège, en émission α (section II-1).

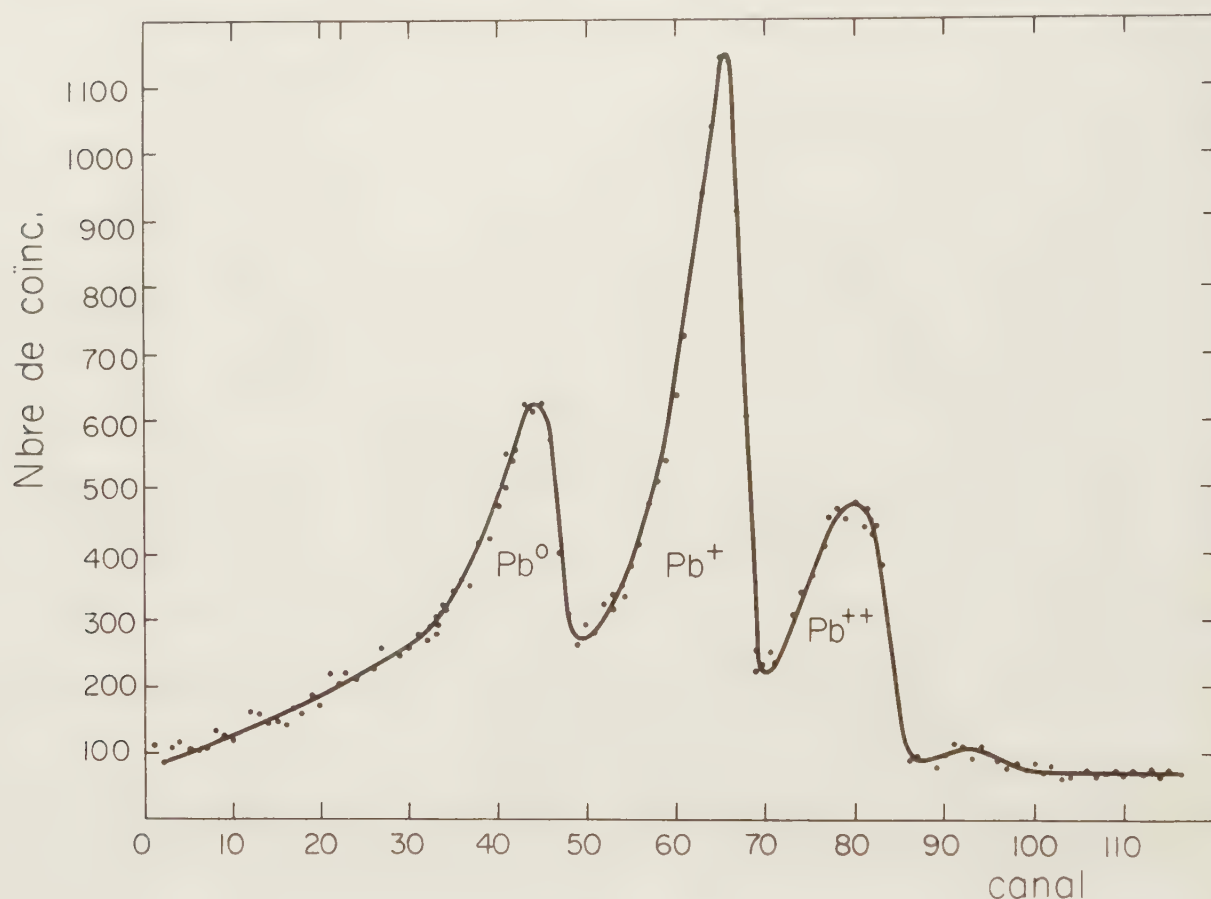


Fig. 33 - Spectre de charge des atomes $^{208}Pb^{n+}$. Base de vol, 103 cm ; sensibilité du bloc d'analyse, 10 ns/canal ; tension accélératrice, 30 kV ; durée de l'expérience, 14 h.

ATOMES DE REcul Tl^{n+} :

D'après la figure 31 c, la désintégration α du $^{212}_{83}Bi$ peut laisser le noyau $^{208}_{81}Tl$, soit dans son état fondamental (27,2% des cas), soit dans un état excité à

~ 40 keV (69,9% des cas), soit encore dans un état excité d'énergie supérieure ou égale à 328 keV (2,9% des cas). Nous n'avons étudié que les deux premières éventualités.

La figure 32 nous a déjà montré que la distribution des énergies de recul des atomes Tl^{n+} a le même aspect que celle des atomes Pb^{n+} .

La photographie e (Planche I), qui illustre le résultat d'une analyse bidimensionnelle de la charge (axe Ox) en fonction de l'énergie α (axe Oy), montre que la situation est très différente pour les charges. On y distingue très nettement deux groupes d'atomes : l'un, en coïncidence avec les particules α allant au fondamental de ^{208}Tl , est constitué d'atomes de charge 0 ou 1, l'autre, en coïncidence avec les particules α qui peuplent le niveau à 40 keV, comporte les atomes dont les charges sont comprises entre 4 et 20.

La première de ces distributions correspond à des phénomènes d'ionisation analogues à ceux qui déterminent la charge des atomes Pb^{n+} . Quant à la seconde, elle est essentiellement liée au phénomène de conversion interne, par lequel le noyau ^{208}Tl se désexcite vers son niveau fondamental, et à tous les processus de réorganisation du cortège, que la conversion interne met en jeu (section II-2).

D'après les mesures du coefficient de conversion interne de la transition de 39,85 keV dans ^{208}Tl {Pe 58}, on sait que c'est une transition M1, dont le coefficient de conversion total est supérieur à 20. Donc, dans 5% d'atomes, au maximum, la désintégration α de 6,050 MeV est suivie de l'émission d'un photon de 40 keV; ces atomes ont une charge peu élevée, 0 ou 1, due à l'ébranlement du cortège provoqué par l'émission de la particule α ; l'effet photo-électrique interne, qui conduirait à l'ionisation, par le photon de 40 keV, d'un électron des couches extérieures de l'atome, est en effet très peu probable {Te 51} et n'augmenterait la charge, de toute façon, que d'une unité. La contribution de ces atomes au spectre de charge (Pl. I, e) est conforme à ces prévisions; elle est de l'ordre de 10^{-2} .

On sait, d'autre part, que les coefficients de conversion interne partiels, pour cette transition de 39,85 keV, sont dans les rapports suivants {Se 65} :

$$L_I/L_{II}/L_{III}/M_I/M_{II}/M_{III} = 1000/108/8/268/31/6$$

La conversion interne qui suit la désintégration α de 6,050 MeV crée donc, principalement, des lacunes dans la couche L des atomes de recul ^{208}Tl (80% des conversions). L'apparition de cette lacune L déclenche un réarrangement du cortège; la figure 34 montre, bien résolu, le spectre de charge qui en résulte. On constate que toutes les charges comprises entre 4 et 20 sont possibles, les charges 10, 11, 12 et 13 étant les plus probables.

Nous avons déduit de ce spectre la distribution de charges représentée sur la figure 35, en admettant un fond défini par la ligne en pointillé et en estimant que l'intensité pour chaque charge est proportionnelle à la hauteur du pic correspondant, au-dessus du fond. Cette façon d'évaluer l'intensité a été justifiée dans la section III-2; elle revient à adopter une incertitude expérimentale de 10% sur l'intensité des 8 charges les plus probables et de 30 à 50% sur l'intensité des 4 charges les moins probables.

Nous considérons la distribution ainsi obtenue (fig. 35) comme une distribution "type", définissant le bilan du réarrangement du cortège à la suite d'une conversion interne (et une seule) en couche L. Nous l'avons utilisée pour décomposer des spectres de charge plus complexes, comme nous le verrons plus loin. Cette distribution "type" est gaussienne, centrée sur $n = 11,5$ et sa largeur à mi-hauteur est égale à 8 charges.

On obtient d'ailleurs une distribution analogue en relevant, comme indiqué plus haut, l'intensité en fonction de la charge, à partir de spectres moins bien résolus que celui représenté figure 34 - par exemple, à partir du spectre représenté dans la référence {Pe 66}, figure 3, ou {Pe 67}, figure 6 - et même à partir de spectres non résolus (Pl. I, e).

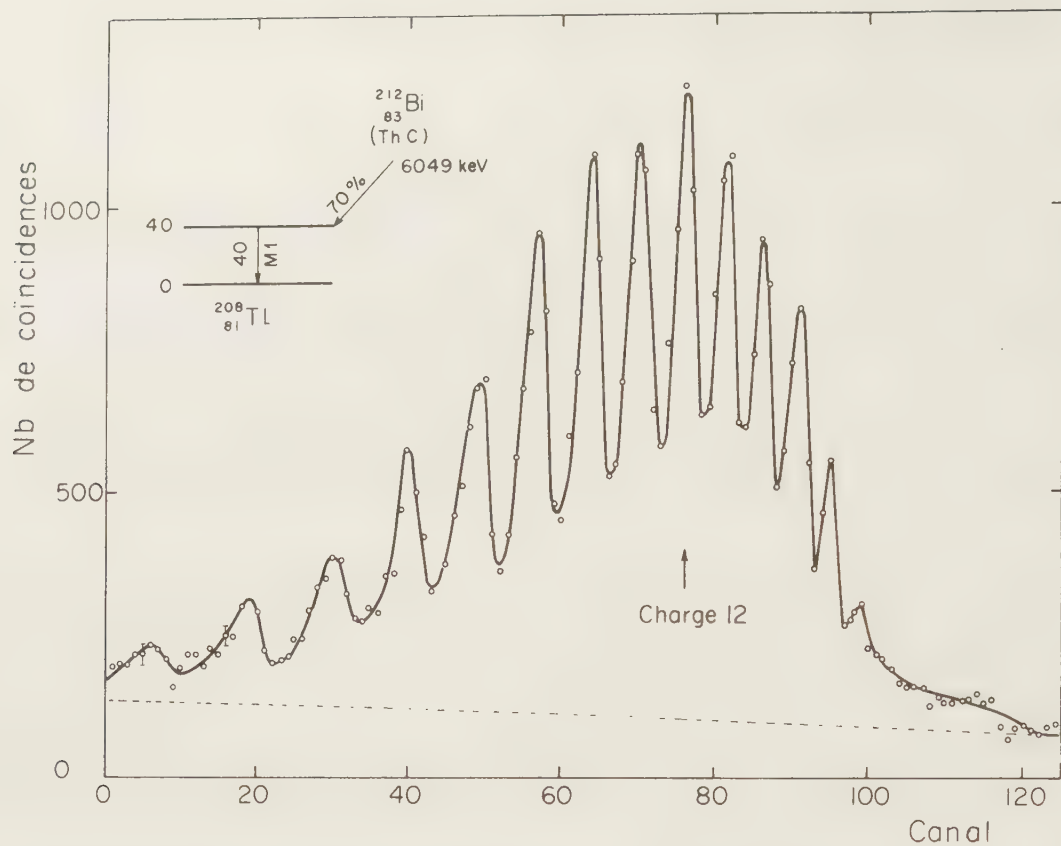


Fig. 34 - Spectre de charge des atomes $^{208}\text{Tl}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α de $6,050\text{ MeV}$. Base de vol, $\sim 200\text{ cm}$; tension accélératrice, $27,5\text{ kV}$; sensibilité du bloc d'analyse, $17,5\text{ ns/canal}$; durée de l'expérience, 30 h .



Fig. 35 - Distribution de charges des atomes $^{208}\text{Tl}^{n+}$ lorsque la désintégration α de $6,050\text{ MeV}$ est suivie de la conversion interne de la transition de $39,85\text{ keV}$.

Nous avons sommé ces derniers spectres, canal par canal, sur la raie α la plus intense, pour obtenir le spectre unique représenté sur la figure 36, entre le 45ème et le 100ème canal; le spectre situé dans les 40 premiers canaux se rapporte à l'autre raie α (atomes de charge 0 et 1).

Nous avons fait figurer ces deux spectres côte à côte, pour montrer l'un des effets les plus frappants de la focalisation : l'excès de collection des atomes de charge $n > 5$. En effet, les atomes de recul en coïncidence avec les particules α de 6,090 MeV ont pratiquement tous une charge 0 ou 1, et les atomes de recul en coïncidence avec les particules α de 6,050 MeV ont pratiquement tous une charge $n > 5$ (transition de 40 keV très convertie). Comme les deux raies α sont dans le rapport :

$$\frac{27,2}{69,9} = \frac{39}{100}$$

on devrait avoir le même rapport entre les surfaces S_1 et S_n (fig. 36).

Or, le rapport expérimental est :

$$\left(\frac{S_1}{S_n} \right)_{\text{exp}} = \frac{12}{100}$$

Si donc on admet que les charges $n < 2$ sont normalement collectées, lorsqu'il y a accélération, on en déduit que les charges $n > 5$ le sont au moins trois fois plus. Cette remarque est générale : nous avons constaté cette même disproportion entre la collection des charges inférieures à deux, et celle, supérieures à cinq, dans tous les cas que nous avons étudiés, quelle que soit la source.

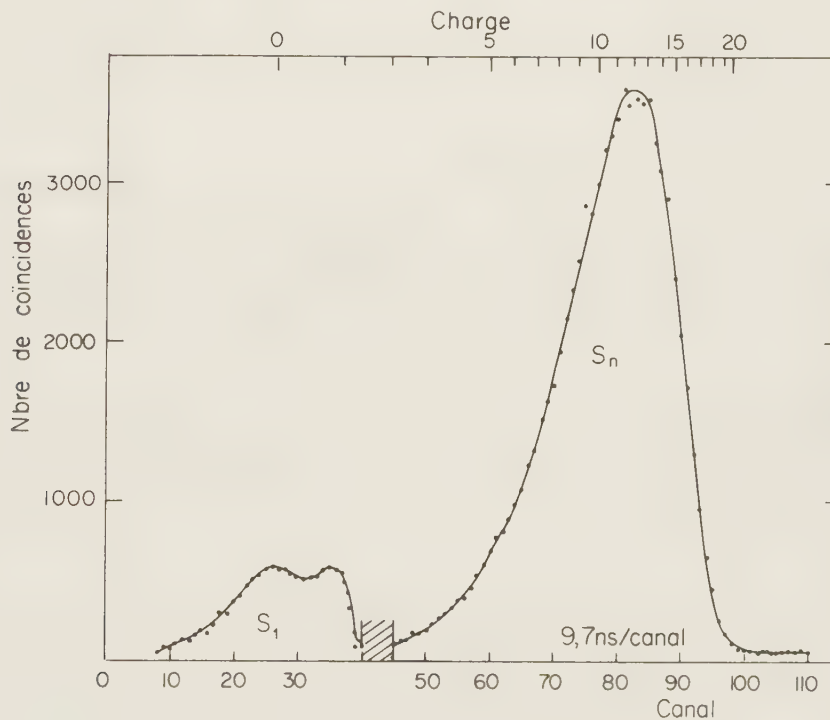


Fig. 36 - Spectre de charge des atomes $^{208}\text{Tl}^{n+}$ obtenu par sommation des spectres représentés sur la photographie e (planche I); le groupe de gauche est en coïncidence avec les particules α de 6,090 MeV, et celui de droite, avec les particules α de 6,050 MeV. Base de vol, ~ 60 cm ; tension accélératrice, 10 kV.

$^{227}_{90}\text{Th}$ (RdAc) est un émetteur α dont la structure fine est très complexe : plus de quarante raies α {Ba 64}. Les raies α les plus intenses sont cependant groupées autour de trois énergies, nettement séparées l'une de l'autre d'environ 150 keV, comme le montre la photographie a de la planche I (le spectre α se trouve dans le plan $x=0$) et le tableau VIII.

Groupe 1 ~ 6 MeV		Groupe 2 ~ 5,86 MeV		Groupe 3 ~ 5,7 MeV	
E_{α} (keV)	I(%)	E_{α} (keV)	I(%)	E_{α} (keV)	I(%)
6037	24,5	5914	0,78	5755	20,3
6007	2,9	5908	0,17	5711	4,9
5976	23,4	5865	2,42	5707	8,2
5958	3	5806	1,27	5699	3,6
	-----		-----	5691	1,5
	53,8		4,64	5666	2,1

					40,6

Tableau VIII - Groupement des raies α les plus intenses du spectre α du radioactinium.

Les intensités des raies sur la photographie a (Pl. I) ne correspondent pas à celles consignées dans le tableau VIII, en particulier pour le groupe de 5,7 MeV (au premier plan sur la photographie) car, pour cette énergie α , le spectre du descendant ^{223}Ra (Ac X) vient se superposer à celui de ^{227}Th ; cela n'est toutefois pas gênant pour nos mesures.

Les photographies a et b (Pl. I) nous ont déjà montré le spectre de temps de vol des atomes de recul ^{223}Ra , non accélérés, en coïncidence avec les particules α des groupes 1 et 3. Les surfaces des raies obtenues sont bien dans le rapport des intensités α de ^{227}Th :

$$\frac{(\text{atomes Ra})_{6 \text{ MeV}}}{(\text{atomes Ra})_{5,7 \text{ MeV}}} \sim \frac{54}{41} \sim 1,3$$

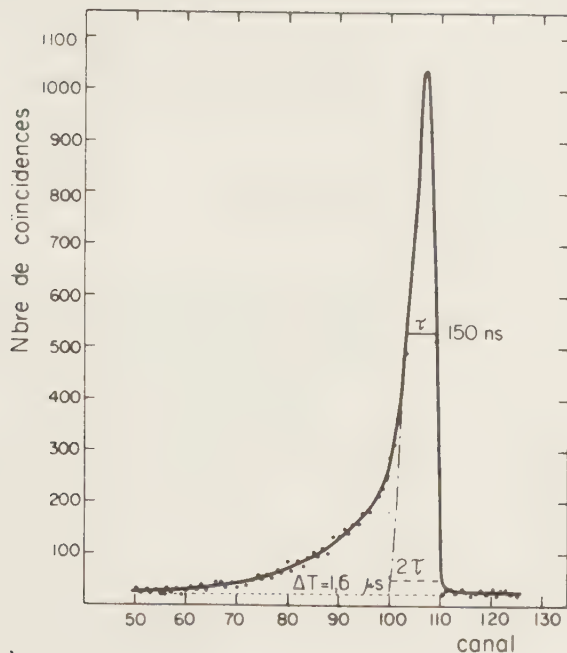


Fig. 37 - Spectre de vitesse des atomes ^{223}Ra , émis par une source de radioactinium, en coïncidence avec les particules α dont l'énergie est voisine de 6 MeV. Base de vol, 160 cm ; sensibilité du bloc d'analyse, 27 ns/canal ; durée de l'expérience, 12 h.

La forme de ces raies (fig.37) est analogue à celle observée dans le cas des atomes ^{208}Pb et ^{208}Tl comme on peut le voir en comparant les figures 37 et 32; la largeur à mi-hauteur est plus grande sur la figure 37, car la base de vol a été portée de 1m à 1,6m. De la figure 37, on déduit que la finesse de la source était d'environ 6%.

Les photographies c et d (Pl. I) montrent le spectre de temps de vol des atomes ^{223}Ra , en coïncidence avec les deux groupes α 1 et 3, lorsque l'on accélère ces atomes. On constate que les deux distributions de charges sont beaucoup plus étalées que dans le cas des atomes Tl^{n+} - la charge moyenne est ici deux fois plus grande, 20 et plus au lieu de 11,5 - le groupe en coïncidence avec les α de $\sim 5,7$ MeV étant le plus étalé des deux. Pour expliquer cette différence, nous allons examiner chaque groupe séparément, en fonction des cascades de conversions internes qui peuvent survenir dans l'atome de recul ^{223}Ra , immédiatement après la désintégration α du noyau parent ^{227}Th .

ATOMES $^{223}\text{Ra}^{n+}$ EN COINCIDENCE AVEC LES α DU GROUPE 1 :

D'après le schéma de niveau partiel reproduit fig. 38, on voit qu'en dehors des cas déjà rencontrés pour les atomes Pb^{n+} et Tl^{n+} :

- a - désintégration α non suivie de conversion interne,
- b - désintégration α suivie d'une conversion interne (1 seule); il existe ici une 3ème éventualité;
- c - désintégration α suivie d'une cascade de deux conversions internes successives.

Il en résulte des charges pouvant atteindre 30 et plus, comme le montrent les photographies f et g (Pl. I); elles illustrent la variation de la charge des atomes de recul $^{223}\text{Ra}^{n+}$ lorsque l'on passe des coïncidences avec les particules α de 6,037 MeV (en haut des deux photographies) aux coïncidences avec les particules α de 5,958 MeV.

La figure 38, courbe en trait continu, représente la distribution totale de charge qui correspond au mélange des situations (b) et (c) pour les atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ en coïncidence avec les α de 5,976 MeV. Nous avons tenté de dissocier les deux cas l'un de l'autre, en étudiant séparément les atomes ^{223}Ra en coïncidence avec les particules α de 6,007 MeV, pour soustraire ensuite la distribution ainsi obtenue (cas (b) seul) de la distribution totale (b) + (c). Cette étude ne nous a pas permis de résoudre le problème complètement; elle nous a cependant conduit à admettre que la distribution relative à une seule conversion interne, dans le cas des atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$, était analogue à celle que nous avons obtenue pour les atomes $^{208}\text{Tl}^{n+}$ (fig. 35).

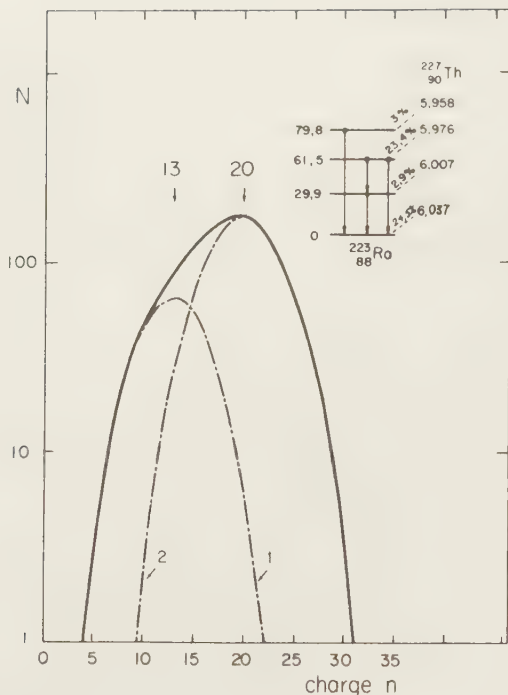


Fig. 38 - Distribution de charges des atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$, en coïncidence avec les particules α d'énergie voisine de 6 MeV; la courbe 1 ; centrée sur 13, correspond au cas où la désintégration α est suivie d'une seule conversion interne (distribution à une lacune) et la courbe 2, centrée sur 20, au cas où la désintégration α est suivie de deux conversions internes successives (distribution à deux lacunes).

$$\left(\frac{\text{atomes } ^{223}\text{Ra} \text{ chargés à la suite de deux conversions}}{\text{atomes } ^{223}\text{Ra} \text{ chargés à la suite d'une conversion}} \right)_{E_{\alpha} = 5,976 \text{ MeV}} = 2,6$$

tandis que notre première décomposition donnait presque le double. Il est à noter que, dans les deux cas, la distribution des atomes chargés à la suite d'une cascade de 2 conversions internes est toujours centrée sur 20; mais sa largeur à mi-hauteur diminue d'une charge et devient égale à 8,5.

ATOMES $^{223}\text{Ra}^{n+}$ EN COÏNCIDENCE AVEC LES α DU GROUPE 2 :

La plupart des particules α de ce groupe alimentent des niveaux qui se déséxcitent sur le niveau à 61,5 keV, que nous venons d'étudier. Il existe donc ici des cascades de 3 transitions successives, fortement converties. Comme chacune d'elles peut donner lieu à une réorganisation du cortège qui dépouille celui-ci d'une dizaine d'électrons - on conçoit que l'atome de recul voit sa charge croître rapidement et atteindre des valeurs supérieures à 30. C'est ce que confirment les spectres de temps de vol.

Nous en avons déduit la distribution représentée sur la figure 39; elle se rapporte plus particulièrement aux atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α de 5,865 MeV qui peuplent le niveau à 174,7 keV.

La difficulté, toutefois, était de savoir s'il fallait continuer à la centrer sur 11,5 ou s'il fallait adopter 12 ou davantage, car nous passons de $Z = 81$ à $Z = 88$. Nous avons d'abord proposé 12 {DeW 67}; mais l'étude des atomes de recul $^{219}\text{Rn}^{n+}$ (char-

ge moyenne 12,5) et celle de $^{237}\text{Np}^{n+}$

(charge moyenne 14), que nous avons faites depuis {DeW 68 et 69}, nous incitent à penser que 13 se justifie mieux. Cette valeur nous paraît d'autant plus indiquée qu'elle conduit à des distributions (1) et (2) - à une et deux lacunes - (fig. 38) dont le rapport des surfaces est en meilleur accord avec le rapport d'embranchement du niveau à 61,5 keV dans ^{223}Ra . Ce niveau se déséxcite en effet, par conversion interne, environ deux fois plus souvent vers le niveau à 29,9 keV que vers le fondamental. Or, d'après la figure 38, on a :

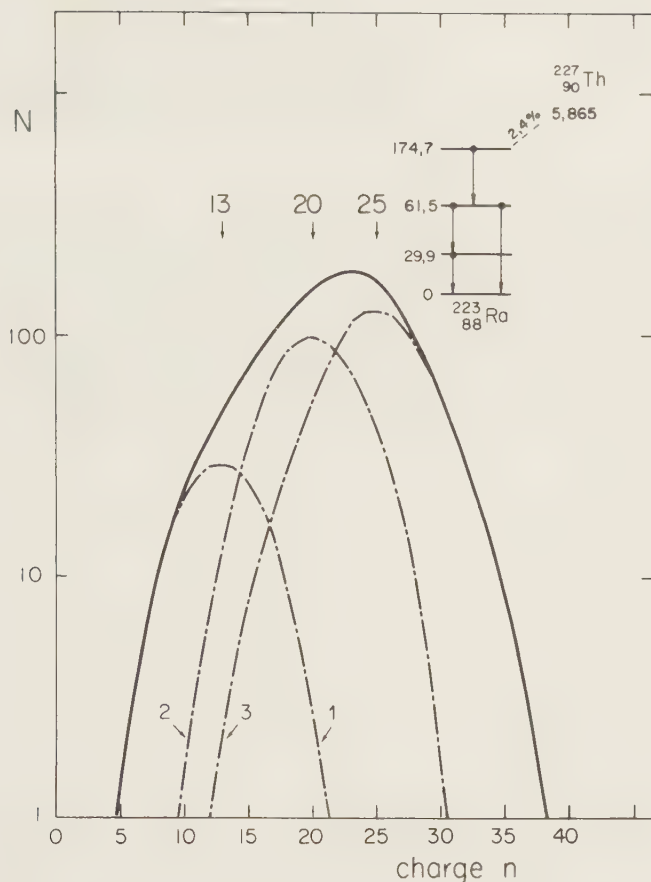


Fig. 39 - Distribution de charges des atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α d'énergie voisine de 5,86 MeV ; la courbe 3, centrée sur 25 correspond au cas où la désintégration α est suivie d'une cascade de trois conversions internes (distribution à trois lacunes).

Par soustraction des distributions (1) et (2), centrées sur 13 et 20, qui concernent respectivement les atomes ionisés à la suite d'une seule conversion interne et ceux ionisés à la suite d'une cascade de deux conversions, nous avons isolé une distribution centrée sur 25 et qui concerne les atomes de recul ionisés à la suite d'une cascade de trois conversions internes successives. Comme les distributions (1) et (2), la distribution (3) est quasi-gaussienne; sa largeur à mi-hauteur est de 9 unités de charge.

Les surfaces des trois distributions (figure 39) sont dans les rapports :

$$(1)/(2)/(3) = 143/100/25$$

Or, si l'on adopte pour le rapport d'embranchement du niveau à 61,5 keV, la valeur 2,6 trouvée précédemment et si l'on prend pour coefficient de conversion interne de la transition E2 de 113 keV la valeur $\alpha = 4$, on trouve que les cascades à 1,2 ou 3 conversions internes devraient être dans les rapports :

$$\text{I/II/III} = 154/100/16;$$

ce qui est en assez bon accord avec le résultat de la décomposition.

ATOMES $^{223}\text{Ra}^{n+}$ EN COINCIDENCE AVEC LES α DU GROUPE 3 :

Comme le montre le schéma de niveaux de ^{223}Ra {Vi 67}, nous avons affaire, ici, à un mélange de situations rencontrées précédemment, avec prédominance de cascades à deux conversions internes. La distribution de charge qui en résulte est représentée sur la figure 40.

Il est intéressant de noter que cette distribution se décompose à partir des mêmes courbes (1), (2) et (3) que celles utilisées ou obtenues pour les atomes ^{223}Ra en coïncidence avec les α des groupes 1 et 2. Or, il existe, dans le cas des atomes ^{223}Ra en coïncidence avec les α du groupe 3, des cascades qui passent par les niveaux à 286,2 et 50,2 keV, lesquels ont une vie moyenne longue (0,8 et 0,6 ns respectivement) par rapport à la vie moyenne des lacunes profondes K, L ou M (10^{-13} à 10^{-15} s). Ce résultat nous incite à penser que l'ionisation des atomes de recul (pour $Z > 80$) se fait bien par étapes successives : lorsque la deuxième conversion interne d'une cascade intervient, la réorganisation du cortège entraînée par la première est déjà commencée; la deuxième conversion interne a donc lieu dans un atome de charge élevée, dont les couches internes sont pleines.

Cette hypothèse contraste avec celle émise par A.H. SNELL et al. {Sn 59} pour les atomes ^{79}Br , ionisés à la suite de plusieurs conversions internes successives, consécutives elles-mêmes à une capture électronique dans ^{79}Kr : ces auteurs considèrent en effet

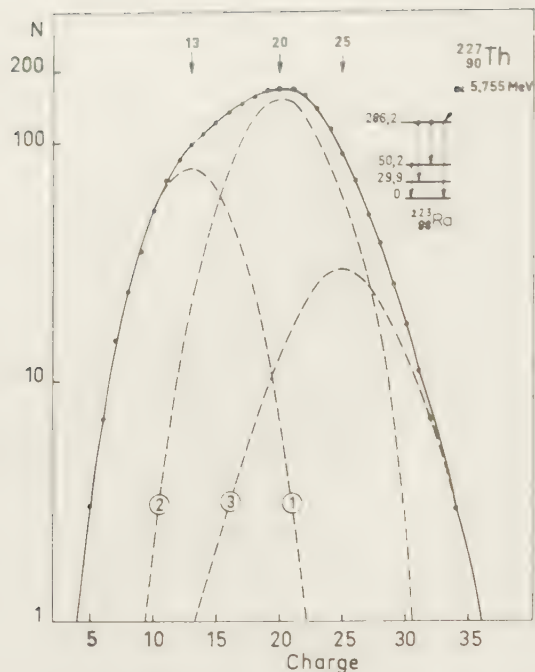


Fig. 40 - Distribution de charges des atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α d'énergie voisine de 5,7 MeV.

que, lors d'une telle cascade d'événements, les lacunes primaires s'accumulent dans les couches profondes du cortège, avant que la réorganisation de celui-ci ne commence.

Il en résulte qu'il est difficile de trouver une expression courte et précise pour désigner les distributions "types" (1), (2) et (3) que nous avons rencontrées au cours de cette étude. Toutefois, pour alléger le texte, nous les appelons quelquefois distributions à une, deux et trois lacunes.

BANDES SATELLITES DANS LE SPECTRE D'ELECTRONS DE CONVERSION INTERNE DE ^{227}Th :

Lorsque l'on étudie les raies de conversion d'un émetteur α , on sait que la composante principale d'une raie (L_{II} , par exemple), pour une énergie de transition E_Y donnée, est due aux électrons émis par des atomes qui ont reculé dans le support de source; ces atomes sont au repos et neutres; les électrons de conversion qu'ils émettent subissent simplement une absorption en quittant la source : la raie de conversion est élargie à la base, de quelques centaines d'électrons-volts, et a une forme assez proche de celle que nous avons obtenue pour les atomes de recul (fig. 37, par exemple). Mais on observe également des électrons émis par des atomes qui ont été projetés dans le vide et qui volent vers le détecteur d'électrons; deux cas sont alors à envisager :

- Si l'atome en vol est neutre, il n'y a lieu de tenir compte que de l'effet Doppler : la raie de conversion est déplacée vers les grandes énergies, avec élargissement (bande Doppler);

- Si l'atome en vol est chargé, il y a lieu de tenir compte, en plus de l'effet Doppler, de la modification de l'énergie de liaison en fonction de la charge ionique : la raie de conversion est déplacée vers les basses énergies (bande satellite).

Ce dernier résultat est dû au fait que l'énergie de liaison croît lorsque la charge augmente. Pour les fragments de fission ($34 < Z < 66$) par exemple ($n > 20$), on a, pour la couche K [Wa 67] :

$$E_{\text{ion}} = E_{\text{neut}} \left[1 + f \left(\frac{n}{Z} \right) e^{-aZ} \right]$$

où n est la charge ionique, a une constante empirique ($a = 1,8484 \cdot 10^{-2}$) et $f(n/Z)$ un polynôme de septième degré en $(n/Z)^{3/2}$:

$$f \left(\frac{n}{Z} \right) = \sum_{k=1}^7 c_k \left[\left(\frac{n}{Z} \right)^{3/2} \right]^k$$

où $C_1 = 0,2491$, $C_2 = -0,6131$, $C_3 = 4,001$, $C_4 = -10,28$, $C_5 = 14,88$, $C_6 = -11,55$ et $C_7 = 3,861$. Comme ordre de grandeur, on peut dire que l'énergie de liaison, dans les couches K et L, pour les fragments de fission, augmente d'environ 1 keV lorsque la charge passe de 0 à 25.

Les bandes satellites, dans le cas du spectre d'électrons de conversion interne émis dans la désintégration $\text{Th}^{227} \rightarrow \text{Ra}^{223}$ ont été observées, pour la première fois, par VALADARES et al. {Va 66} en étudiant les raies de conversion de la transition de 29,90 keV. D'après le schéma de niveaux partiel de ^{223}Ra (fig. 38), on voit, en effet, que le niveau à 29,9 keV est peu alimenté en α ; il est peuplé essentiellement par l'intermédiaire des niveaux supérieurs, soit par des transitions γ ($\sim 25\%$), soit par des conversions internes ($\sim 75\%$); dans ce dernier cas, si tout se passe en vol, à l'extérieur de la source, la désexcitation du niveau à 29,9 keV a donc lieu dans un atome de charge élevée : l'électron de conversion qui en résulte a une énergie inférieure à celle d'un électron de conversion normale (atome neutre, au repos).

L'existence de ces bandes satellites, confirmées depuis par GELLETLY et GEIGER, à Chalk River {Ge 68} constitue un argument de plus en faveur de l'hypothèse de la succession des lacunes primaires, au cours d'une cascade de conversions internes.

Au cours des expériences que nous venons d'exposer, nous avons étudié des émetteurs α de période relativement courte : $^{212}_{82}\text{Pb}(\text{Th B})$, $T_{1/2} = 10,64$ heures et $^{227}_{90}\text{Th}(\text{Rd Ac})$, $T_{1/2} = 18,2$ jours. Il était alors aisé de concilier la finesse des sources avec un taux de comptage raisonnable, même en plaçant le multiplicateur à 2 ou 3 m de la source. Dans le cas de $^{241}_{95}\text{Am}$, dont la période est de 458 ans, les conditions optima de finesse de la source, qui permettent une statistique suffisante en moins de 100 heures, sont beaucoup plus délicates à réaliser. Nous n'y sommes parvenus que grâce à R.J. WALLEN qui nous a préparé une source de 1,5 μCi , très soigneusement déposée, par volatilisation dans le vide, sur un support en mica de 100 mm^2 de surface et de 80 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur.

Nous nous sommes intéressés à la charge des atomes de recul $^{237}_{93}\text{Np}^{n+}$ pour plusieurs raisons, dont la principale était liée au problème des corrélations angulaires perturbées dans des atomes de recul en vol dans le vide {Fl 60}. La perturbation est due aux transitions qui interviennent entre les sous-niveaux magnétiques de l'état nucléaire intermédiaire, pendant sa durée de vie : la distribution de ces sous-niveaux, au moment de l'émission du deuxième γ de la cascade, n'est ainsi plus celle qu'elle était lorsque le premier γ de la cascade a peuplé l'état intermédiaire. Or, parmi l'une des causes qui peuvent être à l'origine des transitions entre les sous-niveaux magnétiques de l'état intermédiaire, figurent les interactions entre le moment magnétique nucléaire et les champs magnétiques qui apparaissent dans les couches électroniques pendant la durée de vie de l'état intermédiaire; ces champs, à leur tour, sont intimement liés aux phénomènes de réorganisation du cortège, c'est-à-dire sont fonction de la charge des atomes de recul.

Nous voulions, d'autre part, au cours de l'étude des atomes Np^{n+} , vérifier s'il fallait retenir l'hypothèse de la succession des lacunes primaires, lors d'une cascade de conversions internes, ou s'il fallait adopter l'hypothèse de leur simultanéité; en effet, dans la première hypothèse, les distributions de charges des atomes $^{237}_{93}\text{Np}^{n+}$ devraient être analogues à celles des atomes $^{208}_{88}\text{Tl}^{n+}$ et $^{223}_{88}\text{Ra}^{n+}$, tandis que dans la seconde hypothèse, la distribution devrait être modifiée pour les atomes $^{237}_{93}\text{Np}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α alimentant le niveau à 103 keV, car la désexcitation de ce niveau fait intervenir le niveau à 59,5 keV, dont la vie moyenne (63 ns) est nettement incompatible avec l'hypothèse de la simultanéité ($< 10^{-13}\text{s}$).

Nous voulions également vérifier si les échanges de charges, au niveau de la source, sont fréquents ou non, dans le cas des charges élevées; en effet, la source de $^{241}_{95}\text{Am}$ constitue, à ce point de vue, une source parfaite, puisque la charge apparaît en vol, à l'extérieur de la source, contrairement à ce qui peut se passer pour une source de dépôt actif ou de Thorium 227.

Enfin, l'étude des atomes $^{237}_{93}\text{Np}^{n+}$ nous permettait d'évaluer l'influence de Z sur la distribution de charges. Elle nous donnait aussi l'occasion de montrer l'importance du problème de la préparation des sources, en comparant nos résultats avec ceux obtenus par G.L. CANO et al. {Can 65}.

Pour tenir compte de la vie moyenne de 63 ns du niveau à 59,5 keV, nous avons placé la source à 6 cm de l'électrode d'entrée G_0 (à la haute tension) du champ accélérateur (fig. 46); elle était maintenue au même potentiel que cette électrode par l'intermédiaire d'un cylindre en aluminium de quelques 1/10ème d'épaisseur. Ainsi, plus de 90% des atomes Np^{n+} avaient leur charge définitive lorsqu'ils pénétraient dans la région d'accélération; cette charge, en effet, n'est acquise que lorsque le niveau à 59,5 keV s'est désexcité; or, la vitesse de recul étant égale à 2,73.10⁷ cm/s, on a :

$$3 T_{1/2} = 1,89.10^{-7}\text{s} \approx \frac{5,2 \text{ cm}}{2,73.10^7 \text{ cm/s}}.$$

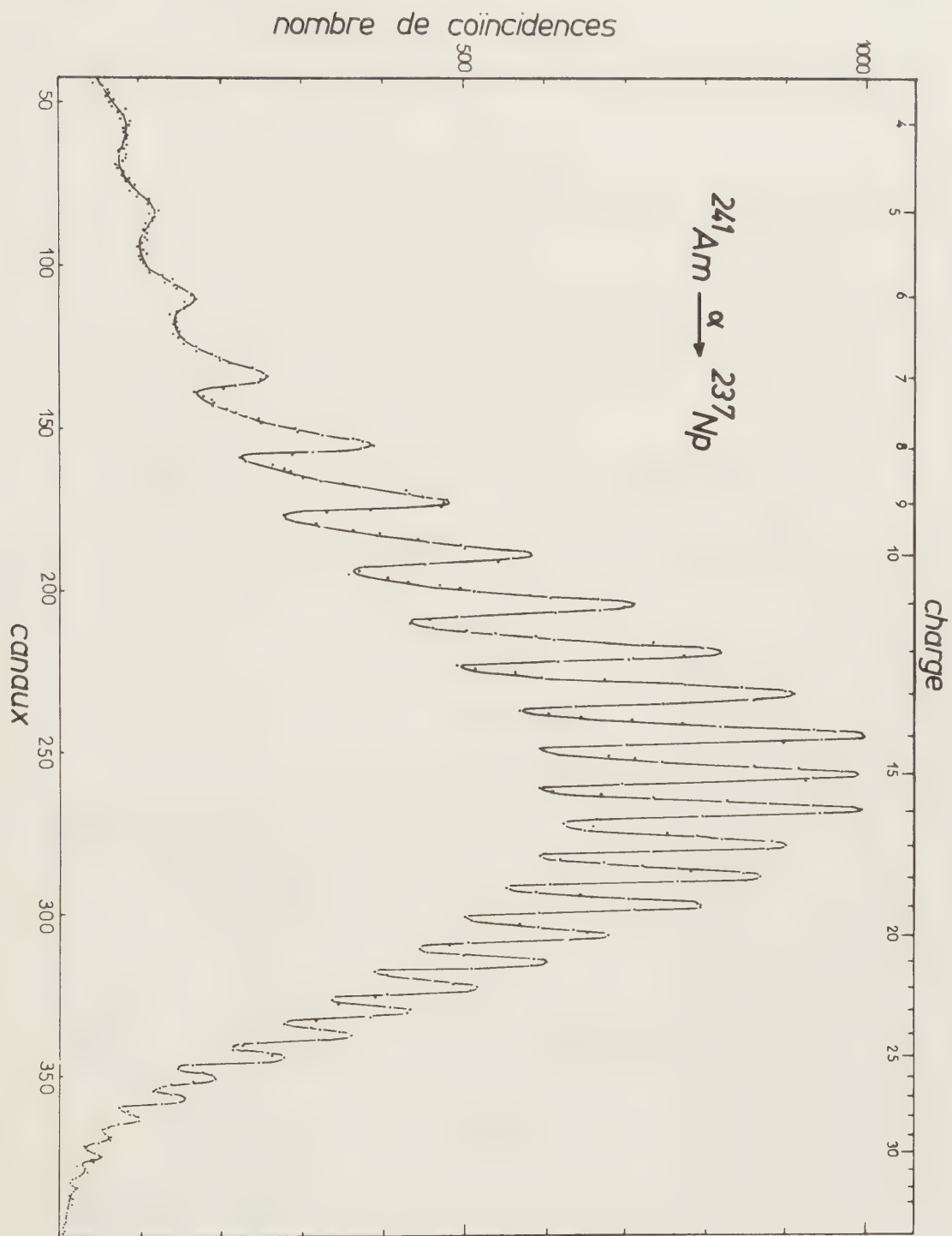


Fig. 41 - Spectre de charge des atomes $^{237}\text{Np}^{n+}$. Base de vol, 106 cm ;
4,1 ns/canal ; $V = 12$ kV ; durée de l'expérience, 50 h.

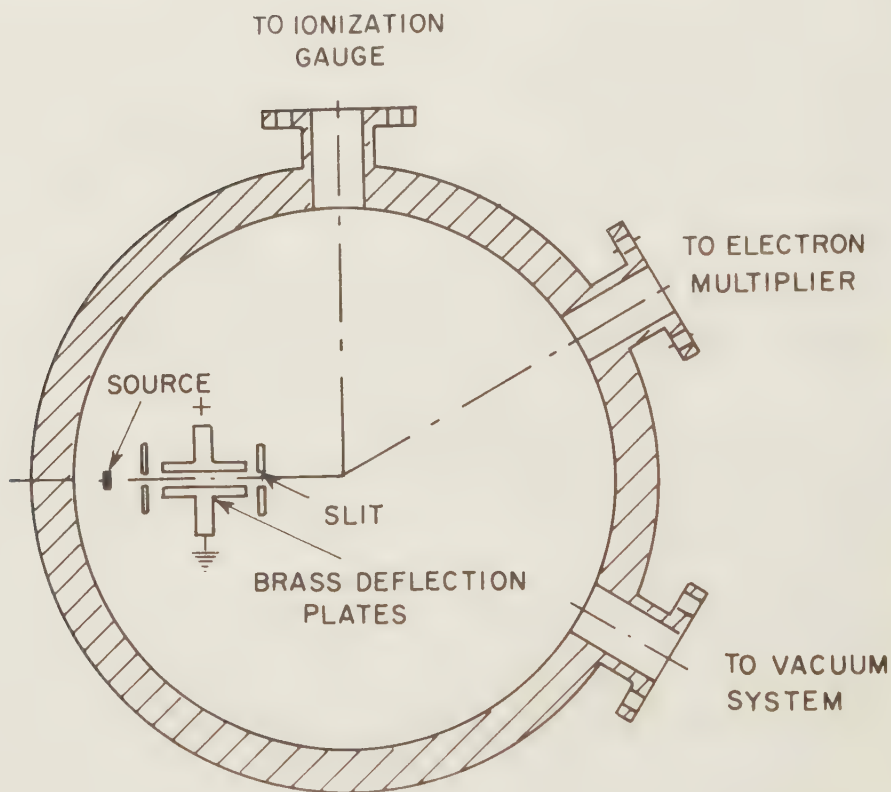
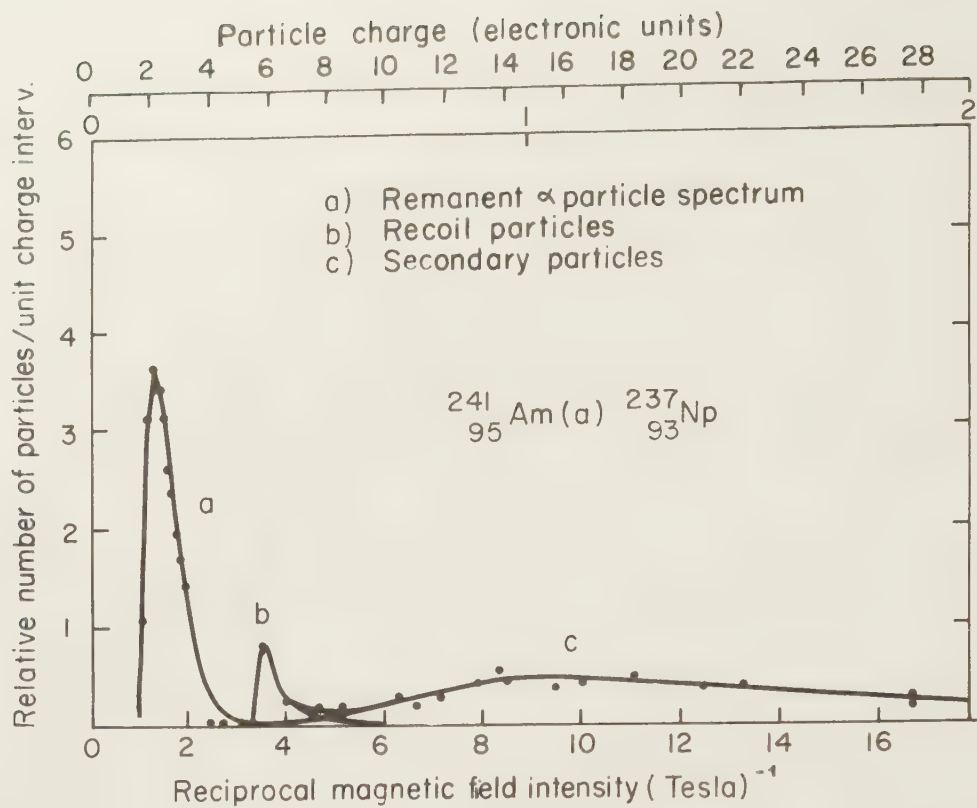


Fig. 42 - Expérience de G.L. CANO et R.W. DRESSEL (Can 65) .
(a) : spectre de charge des atomes $^{237}\text{Np}^{n+}$;
(b) : sélecteur de vitesse.

SPECTRES DIRECTS DE TEMPS DE VOL :

La fig. 41 donne un exemple de spectre direct, obtenu en analysant sur 400 canaux le temps de vol des atomes Np^{n+} en coïncidence avec toutes les particules α ; dans le cas actuel, un tel spectre présente des raies bien séparées, car environ 99% des particules α sont groupées entre deux énergies qui ne diffèrent que d'une quarantaine de keV : $E_{\alpha 1} = 5,486 \text{ MeV}$ (86%) et $E_{\alpha 2} = 5,443 \text{ MeV}$ (12,7%); ceci introduit une fluctuation d'un canal à peine sur le temps de vol des atomes chargés.

A titre de comparaison, nous reproduisons sur la fig. 42 a le spectre de charge obtenu par G.L. CANO et al. {Can 65}; ces auteurs ont étudié une source "épaisse" de nitrate d'américium (déposée sur Pt) au moyen d'un analyseur magnétique précédé d'un sélecteur de vitesse (fig. 42 b). On constate à quel point la finesse de la source est une grandeur critique dans ce type d'expériences.

G.L. CANO et al. précisent d'ailleurs dans leur article, qu'après une inspection préliminaire de la charge des atomes Np^{n+} , ils ont réglé le sélecteur de vitesse sur la valeur $v = 2,2 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$ (alors que la vitesse de recul est égale à $2,7 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$); ceci implique que les atomes de recul qu'ils analysaient avaient subi, en moyenne, en quittant la source, une perte de vitesse définie par :

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{0,5}{2,7} \sim 18,5\%$$

d'où une dispersion en énergie égale à 37%. Il n'est donc pas étonnant que le spectre de charge obtenu par ces auteurs soit profondément altéré, car une telle perte d'énergie suppose, dans la source, plus d'une centaine de collisions (120 eV par paire d'ions, dans l'air {Can 68}).

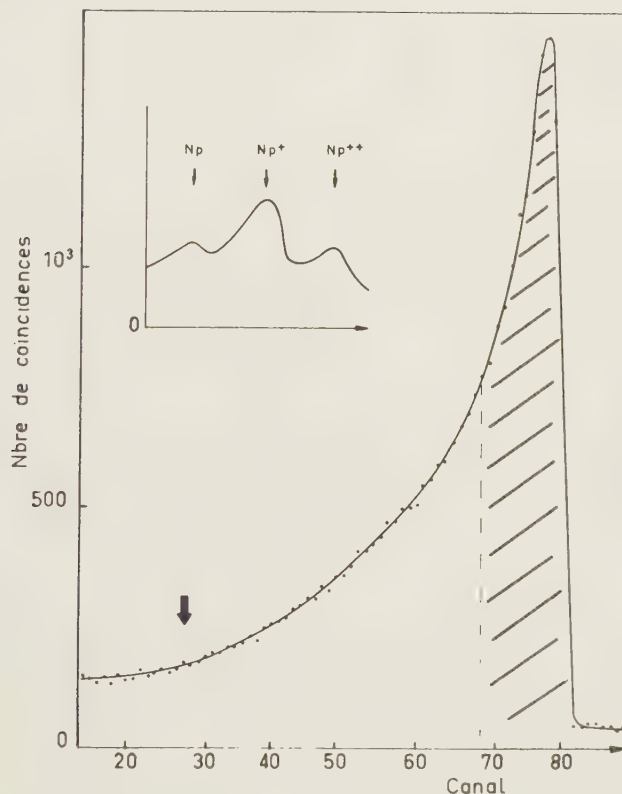


Fig. 43 - Source de ^{241}Am "épaisse".
(a): spectre de vitesse des atomes ^{237}Np (sans accélération) ; (b): spectre de charge pour $n < 3$.

Nous avons nous-mêmes éprouvé des difficultés pour parvenir au résultat présenté fig. 41, non seulement avec une source préparée par voie chimique, mais aussi avec une source préparée par volatilisation dans le vide. Cette dernière avait une épaisseur environ 20 fois supérieure à celle de notre "bonne" source. La figure 43b montre que même le spectre des charges 0, 1 et 2 est déjà notablement modifié. Sur la figure 43a, on peut voir le spectre de temps de vol, sans accélération, qui se rapporte à cette source "épaisse"; il est à rapprocher de celui présenté sur la fig. 37, obtenu dans des conditions de vol et d'analyse presque analogues. On constate (fig. 43a) que la traînée du côté des temps de vol longs a une surface supérieure à celle de la "raie", et que la largeur à mi-hauteur est deux fois plus grande que dans le cas de la figure 37; on en déduit une épaisseur de source d'environ 11%. Mais, en fait, cette dispersion de 11% ne concerne que 45% d'atomes enregistrés (aire hachurée). Si on fait le bilan d'énergie sur les deux tiers d'atomes observés, on obtient une dispersion de 18%.

Pour illustrer à quel point G.L. CANO et al. se trouvaient dans des conditions expérimentales défavorables, nous avons indiqué par une flèche l'emplacement où se seraient situés, sur notre spectre (lui-même défavorable), les atomes de recul ayant la vitesse $v = 2,2 \cdot 10^7$ cm/s; on constate que c'est à la limite du bruit de fond (fig. 43a).

ANALYSE DE LA CHARGE DES ATOMES $^{237}\text{Np}^{n+}$ EN FONCTION DE L'ENERGIE α :

L'analyse de la charge des atomes $^{237}\text{Np}^{n+}$, en coïncidence avec les particules α alimentant le niveau à 59,5 keV (fig. 46a) permet de mettre en évidence deux distributions centrées respectivement sur 14 et 21 (fig. 44); la première d'entre elles correspond aux atomes dont la charge résulte d'un seul processus de réarrangement après la désintégration α (distribution à une lacune); la seconde correspond au cas où la désintégration α est suivie d'une cascade de deux réarrangements (distribution à deux lacunes). Ces deux

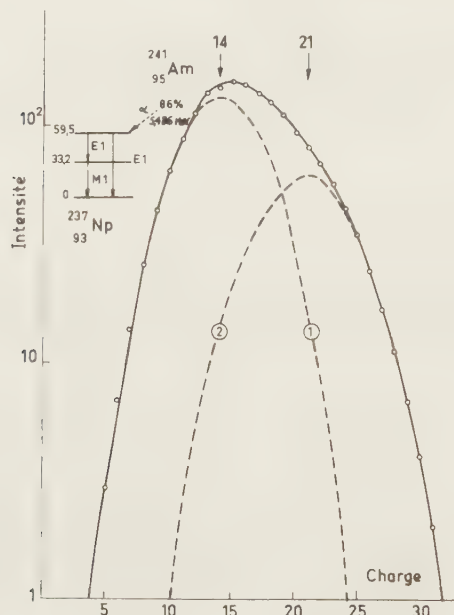


Fig. 44 - Distribution de charges des atomes $^{237}\text{Np}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α de 5,486 MeV.

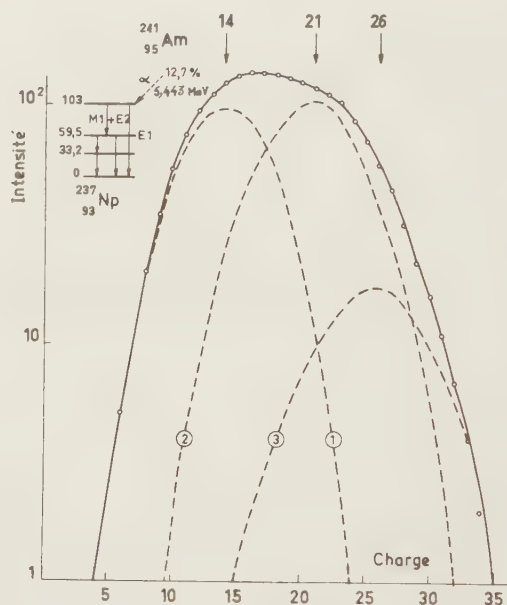


Fig. 45 - Distribution de charges des atomes $^{237}\text{Np}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α de 5,443 MeV.

distributions sont dans le rapport 1/2, ce qui est conforme au schéma de niveaux de ^{237}Np ({Le 66} et {Ya 66}) d'après lequel les atomes $^{237}\text{Np}^{n+}$, en coïncidence avec les α de 5,486 MeV, dans lesquels la désexcitation du niveau à 59,5 keV fait intervenir une seule conversion interne, sont deux fois plus nombreux que ceux dans lesquels cette désexcitation se fait par une cascade de deux conversions internes successives (26,3 keV et 33,2 keV).

A part le déplacement de la charge moyenne de 13 à 14, qui traduit l'influence du numéro atomique, ces distributions sont analogues, quant à leur forme et à leur largeur, à celles que nous avons obtenues pour les atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ (fig. 38). Il en est de même de la distribution à trois lacunes (fig. 45) que l'on déduit de la distribution des atomes $^{237}\text{Np}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α qui alimentent le niveau à 103 keV.

Cette analogie confirme l'hypothèse de la succession des lacunes (section III-3); de plus, elle montre que les échanges de charges, au niveau de la source, pour les atomes Tl^{n+} , Rn^{n+} et Ra^{n+} , de charge élevée, sont peu probables lorsque les atomes reculent dans le vide.

MESURE DE LA PERIODE DU NIVEAU A 59,5 keV DE ^{237}Np :

On sait que dans certains cas {Co 66}, la modification de la structure électronique peut entraîner la modification de la probabilité de désexcitation d'un niveau nucléaire, lorsque cette probabilité fait intervenir la distribution des électrons de la couronne. D'autre part, il est possible, d'après l'étude des fragments de fission {Wa66 a,b} que les coefficients de conversion interne n'aient pas la même valeur selon que la conversion interne a lieu dans un atome multichargé ($n \sim 20$) ou dans un atome neutre. Enfin, une étude récente {Br 67} des électrons de conversion émis par des atomes $^{237}\text{Np}^{n+}$ en vol, signale que le coefficient de conversion interne de la transition E1 de 59,5 keV est probablement influencé par l'état de charge n . Il nous a donc paru intéressant de mesurer la période du niveau à 59,5 keV de ^{237}Np , d'une part pour des atomes neutres, d'autre part pour des atomes fortement ionisés.

Le schéma de niveaux partiel de ^{237}Np (fig. 46a) montre que cette mesure peut être effectuée à partir de coïncidences sur les raies α de 5,443 MeV et de 5,486 MeV. Malheureusement, ces deux raies sont insuffisamment séparées par notre voie α . Nous avons donc utilisé un principe différent, en cherchant à corrélérer directement, par une analyse biparamétrique, les charges mesurées par temps de vol, avec les vies moyennes, mesurées par conversion temps-amplitude (C.T.A.).

Pour réaliser cette expérience, nous avons associé aux détecteurs D_1 et D_2 (fig. 46b) qui mesurent la charge par l'intermédiaire du C.T.A.1, un troisième détecteur (compteur à scintillation INa (Tl)) sensible au rayonnement de 59,5 keV. Ce détecteur D_3 , associé au détecteur D_1 par un deuxième convertisseur temps-amplitude, mesure la période du niveau étudié, par des coïncidences $\alpha_{5,486} - \gamma_{59,5}$.

L'interprétation des coïncidences entre les impulsions de sortie des deux convertisseurs C.T.A.1 et C.T.A.2 est basée sur le fait que l'émission d'un rayonnement γ ne modifie pas l'état de charge. Ainsi, lorsque le détecteur D_3 compte un γ de 59,5 keV, émis par un atome en vol multichargé, on est sûr que la charge de cet atome préexistait à l'émission γ ; c'est cette charge que l'on mesure en accélérant l'atome de recul, à sa sortie du tube cylindrique en aluminium, entre G_0 et G_1 .

La source de ^{241}Am que nous avons utilisée étant déjà vieille de huit mois, il ne nous a été possible de distinguer qu'entre le groupe de charges 0, 1 et 2 et le groupe de charges 5 à 32 (fig. 46b, spectre γ seul), sans pouvoir effectuer la mesure pour chaque charge en particulier. La vie moyenne observée pour le groupe d'ions multichargés semble légèrement plus courte que celle observée pour le groupe d'ions monochargés. Il est cependant difficile de conclure, car le taux de comptage était très faible (1 coup/minute), et bien que l'expérience ait duré 300 heures, la statistique ne permet pas une précision meilleure que 10%, or la différence constatée est inférieure à 10%.

Il faut noter que la position du détecteur D_3 , sur une perpendiculaire à la trajectoire des atomes de recul, et suffisamment en retrait par rapport à cette trajectoire (~ 10 cm) est très importante pour que la mesure de la vie moyenne ne soit pas compliquée par une variation de l'angle solide, en fonction de l'instant d'émission du rayonnement $\gamma_{59,5}$. En effet, si l'on place le détecteur D_3 dans l'axe du tube de vol (fig. 46c) à $\frac{l}{2}$ cm de la source, on a, pour les γ émis par les atomes qui se désexcitent à x cm de la source :

$$\Omega_x = 2\pi(1 - \cos\theta_x) = 2\pi \left(1 - \frac{l-x}{\sqrt{(l-x)^2 + r^2}} \right)$$

où $2r$ désigne le diamètre du cristal scintillateur INa(Tl); le nombre d'atomes émetteurs présents au point x étant :

$$N_x = N_0 e^{-\lambda \frac{x}{v}}$$

où λ est la constante radioactive ($\lambda = 0,693/63$ ns) et v la vitesse de recul ($v = 2,73 \cdot 10^7$ cm/s).

Dans la plupart des cas rencontrés au cours de l'étude des atomes $^{208}\text{Tl}^{n+}$, $^{223}\text{Ra}^{n+}$ et $^{237}\text{Np}^{n+}$, la charge de ces atomes résultait d'une réorganisation du cortège à la suite de conversions internes en couche L principalement. Avec les atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$, dont le noyau se désexcite par deux transitions de très faible énergie (14,4 et 4,4 keV), nous avons l'occasion d'étudier une distribution de charges résultant d'une réorganisation du cortège à la suite d'une conversion interne en couche M. Cette étude nous permettait, en même temps, de compléter la série des gaz rares : ^{18}Ar , ^{36}Kr et ^{54}Xe , dont la distribution de charges, pour des lacunes primaires M, avait déjà été établie par l'équipe d'Oak Ridge [Hu 66].

Nous avons disposé de deux sources d'actinium X (^{223}Ra) préparées par volatilisation dans le vide, l'une sur un support en mica de $80\mu\text{g}/\text{cm}^2$ et l'autre sur un support en alumine de $40\mu\text{g}/\text{cm}^2$; chacune d'elles avait une activité totale initiale de $10\mu\text{Ci}$, répartie sur 50 mm^2 . Elles ont été étudiées pendant trois périodes ($T_{1/2} = 11,4$ jours) et ont fourni des résultats analogues (comme le montre la figure 28, par exemple).

Par suite de la faible intensité des raies α alimentant les niveaux à 14,4 et 4,4 keV [Wa 62] et la résolution insuffisante de la voie α pour séparer des raies aussi rapprochées, il ne nous a pas été possible d'observer directement l'effet des lacunes primaires M dans un atome neutre; nous n'avons observé l'effet de ces lacunes que comme deuxième terme d'une cascade de deux conversions internes successives (peuplement des niveaux à 14,4 et 4,4 keV par des niveaux d'énergie plus élevée).

ANALYSE DE LA CHARGE DES ATOMES $^{219}\text{Rn}^{n+}$ EN FONCTION DE L'ENERGIE α :

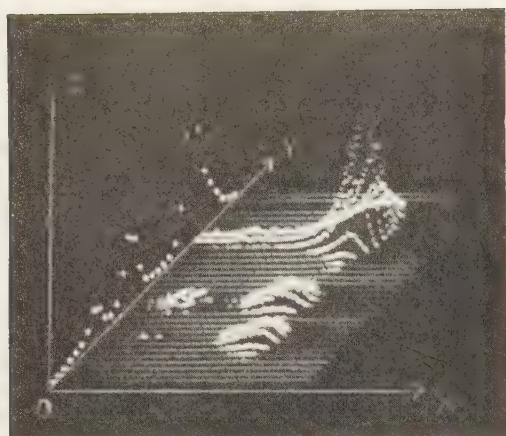
Les photographies a, b et d (Planche II) montrent, dans le plan $x = 0$, les trois raies α sur lesquelles nous avons fixé la voie Y (32 canaux) de l'analyseur bidimensionnel; on y distingue, de haut en bas : $E_{\alpha_1} = 5,714\text{ MeV}$ (53,7%), $E_{\alpha_2} = 5,605\text{ MeV}$ (26%) et $E_{\alpha_3} = 5,538\text{ MeV}$ (9,1%); dans la voie X (128 canaux) était analysé le temps de vol des atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$ correspondants.

Les photographies a, b et c (Pl. II) donnent le spectre de charge complet des atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$ ($0 < n < 30$), tandis que les photographies d, e et f donnent plus particulièrement le détail de la distribution pour $n > 5$. On peut voir d'autres illustrations de ces spectres sur les figures 27, 28 et 29, ainsi que dans la référence [DeW 69]. Sur les photographies c et f, les trois spectres se rapportent respectivement (de haut en bas) aux trois raies α : α_1 , α_2 et α_3 ; pour rendre ces trois spectres également lisibles et compenser le manque d'intensité de α_2 et α_3 vis-à-vis de α_1 , nous avons adopté, au moment de la prise de vue, les agrandissements suivants (pour N) : x_1 , x_2 et x_5 .

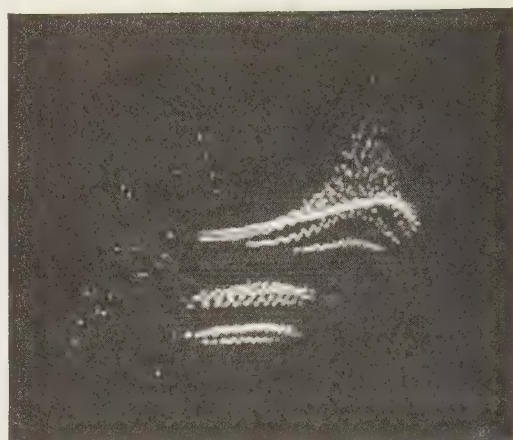
En décomposant les spectres de charge comme il a été exposé dans la section III-2, nous avons pu mettre en évidence deux distributions, de même largeur, centrées sur 12,5 et 18,5 (fig. 47); la première correspond au cas où la désintégration α_1 n'est suivie que d'une seule conversion interne (distribution à une lacune), et la seconde, au cas où elle est suivie d'une cascade de deux conversions internes successives (distribution à deux lacunes).

Les rayonnements γ de 144,3, 154,3 et 158,7 keV qui désexcitent le niveau à 158,7 keV de ^{219}Rn ont respectivement pour intensités relatives : 34%, 58,5% et 7,5% [Br68]. Les coefficients de conversion correspondants, déduits des tables de HAGER et SELTZER [Ha 67], ont pour valeur environ 4 pour les deux premières transitions et 2,5 pour la troisième, la conversion ayant lieu surtout dans la couche K (plus de 80% de conversions). Par suite du rendement de fluorescence élevé ($\sim 96\%$) dans la couche K d'un atome Rn, le réarrangement du cortège à partir d'une lacune primaire K équivaut au réarrangement qui

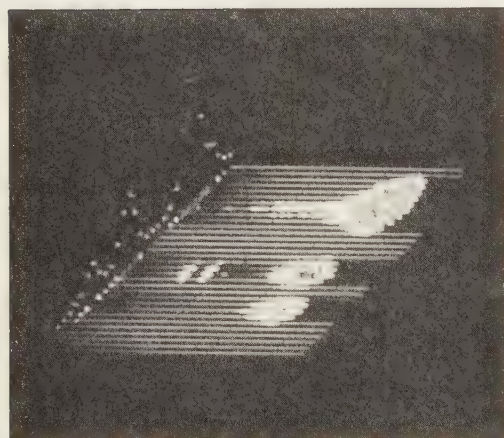
PLANCHE II



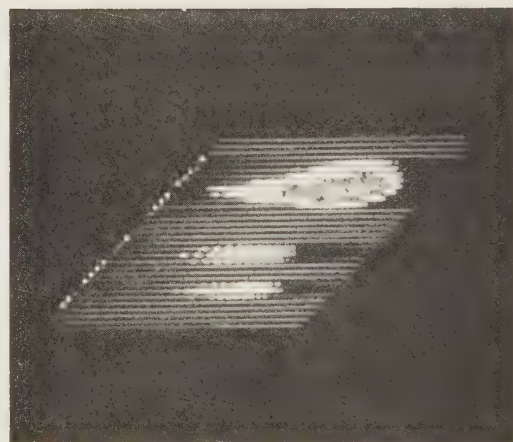
(a)



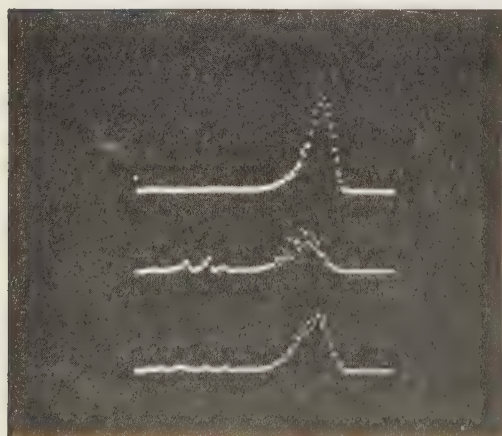
(d)



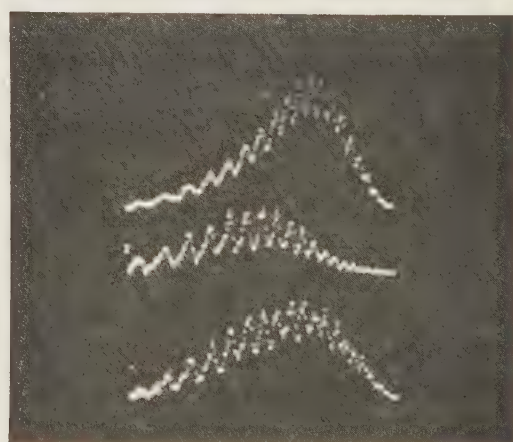
(b)



(e)



(c)



(f)

Planche II - Clichés obtenus à partir de l'oscilloscope de l'élément de visualisation RG96 (INTERTECHNIQUE) montrant le nombre de coïncidences (axe Oz) en fonction du temps de vol des atomes de recul (axe Ox) et de l'énergie α (axe Oy). Les clichés (a) et (d) donnent une vue en perspective ; (b) et (e) donnent une projection sur le plan Oxy ; (c) et (f) donnent des coupes par des plans $y = Cte$, passant par les sommets des trois pics α visibles, dans le plan $x = 0$, sur le cliché (a). Les six clichés concernent les atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$. Suivant l'axe Ox, plus x est grand, plus la charge est élevée et plus le temps de vol est court.

(a) : Base de vol, 105,5 cm ; tension accélératrice, 15 kV.
(b) : Base de vol, 104 cm ; tension accélératrice, 20 kV.
(d) et (e) : Base de vol, 244 cm ; tension accélératrice, 12 kV.
(c) : Base de vol, 104 cm ; tension accélératrice, 20 kV. Pour tenir compte de la différence d'intensité des raies α (cliché (a), plan $x=0$) nous avons adopté, au moment de la prise de vue, les agrandissements suivants (de haut en bas) : x 1, x2, x5.
(f) : Base de vol, 104 cm ; tension accélératrice, 30 kV ; agrandissements (de haut en bas) : x1, x2, x5.

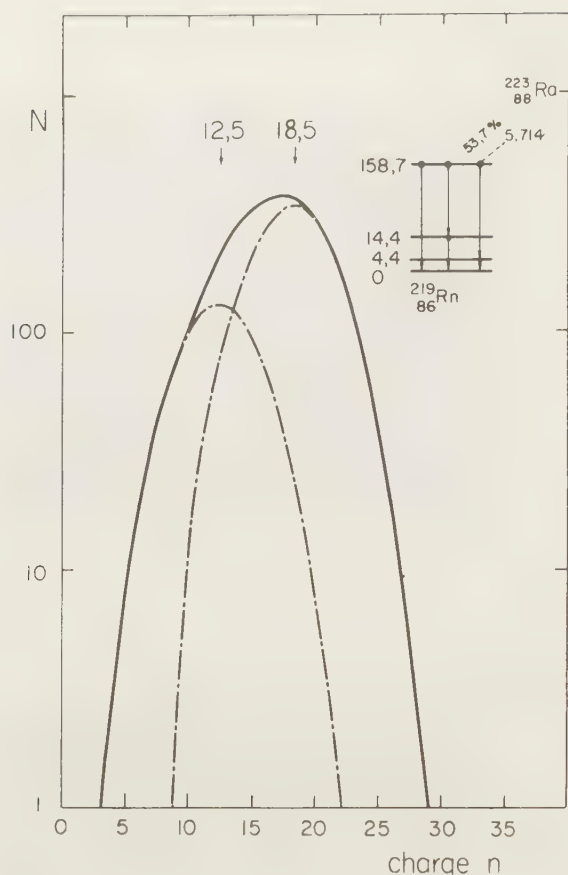


Fig. 47 - Distribution de charges des atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$ en coïncidence avec les particules α de 5,714 MeV.

il est difficile d'en déduire la multipolarité de la transition de 14,4 keV. On se heurte à une difficulté d'interprétation analogue, lorsque l'on examine, dans les deux hypothèses ci-dessus, le nombre d'atomes de charge peu élevée (désintégration α non suivie de conversion interne); entre une E1 et une M1, le nombre de ces atomes devrait passer de 2% à 3,5% du nombre total d'atomes en coïncidence avec les particules α_1 . Dans les deux cas, ce nombre reste difficilement mesurable par notre méthode de temps de vol, car, par suite d'effets de focalisation (section I-6), il représente une contribution, du côté des charges peu élevées, inférieure à 1% de la contribution due aux atomes multichargés. L'expérience confirme (Pl. II, canaux 0 à 50 de la courbe en haut de la photographie c) qu'il n'y a pratiquement pas d'atomes neutres ou une fois chargés, en coïncidence avec α_1 .

Nous devons souligner que la spectrométrie de charge est très sensible au nombre de transitions qui interviennent dans une cascade. Ainsi, dans le cas actuel (atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$ en coïncidence avec α_1), nous n'observons pas de charges supérieures à 30, car il n'y a pas de cascade mettant en jeu trois conversions internes successives. De même, nous n'observerions pas un si grand nombre d'atomes ($\sim 75\%$) dans la distribution à deux lacunes, si la transition de 4,4 keV n'existait pas entre le niveau à 158,7 keV et le fondamental. C'est ce que démontre la distribution des atomes $^{219}\text{Rn}^{n+}$ multichargés, en coïncidence avec α_2 (Pl. II, phot. c et f) dont la charge moyenne est nettement inférieure (de 4 à 5 charges) à la charge moyenne des deux autres distributions; en effet, les particules α_2 alimentent le niveau à 269,5 keV de ^{219}Rn qui se désexcite essentiellement vers le fondamental, en une seule transition.

Dans le cas des atomes ^{219}Rn en coïncidence avec α_2 ou α_3 , les coefficients

débiterait dans les couches L_{II}, III (fig. 22). Il n'est donc pas étonnant que la distribution centrée sur 12,5, qui correspond à une lacune primaire K, soit analogue à celle que nous avons obtenue pour une lacune primaire L (fig. 35).

La distribution centrée sur 18,5 fait intervenir la conversion interne des transitions de 14,4 et 4,4 keV; l'énergie mise en jeu est trop faible pour que la conversion ait lieu en couche L (un électron L_{III} a une énergie de liaison de 14,62 keV); la conversion de ces transitions de basse énergie crée donc essentiellement des lacunes M. Il en résulte que la distribution à deux lacunes, obtenue ici, est moins large que celle que l'on obtient lorsque la seconde conversion interne de la cascade a lieu en couche L (fig. 38, courbe 2), de plus, la charge moyenne est moins élevée.

D'après les données de spectrométrie γ et e^- qui précèdent, on peut prévoir le nombre d'atomes ^{219}Rn pour lesquels la désintégration α de 5,714 MeV est ou n'est pas suivie de conversion interne; il faut toutefois faire une hypothèse sur le coefficient de conversion interne de la transition de 14,4 keV. Si l'on suppose que c'est une E1, on trouve que les distributions à une et deux lacunes devraient être dans le rapport $7/17 \sim 0,41$; par contre, si c'est une M1 (ou une transition encore plus convertie) on devrait avoir le rapport $12/37 \sim 0,32$. Le rapport expérimental étant égal à $0,37 \pm 0,05$,

de conversion interne des transitions de 269,5, 323,9 et 338,3 keV sont inférieurs à l'unité. La contribution des atomes de charge peu élevée n'est donc plus négligeable, comme le montrent les photographies a, b et c (Pl. II). On constate que les atomes de charge 1 ne sont guère plus nombreux que les atomes neutres, ainsi que nous l'avons vu pour les atomes ^{208}Tl , mais contrairement à ce que nous avons observé pour les atomes ^{208}Pb , ^{223}Ra et ^{237}Np où les charges 1 étaient prépondérantes. L'explication de cette différence a été proposée dans la section I-7.

REARRANGEMENT DU CORTEGE DANS UN ATOME LOURD MULTICHARGE :

Nous avons vu dans la section II-2 (fig. 22) quelle était la charge moyenne à laquelle on devait s'attendre, lors de l'apparition brusque d'une lacune primaire profonde K, L ou M, lorsque le réarrangement du cortège avait lieu dans un atome pourvu de tous ses électrons externes. C'est le cas de nos distributions à une lacune : l'ionisation se traduit, en moyenne, par le départ d'une douzaine d'électrons.

Lorsque la réorganisation du cortège a lieu dans un atome dont la couronne est déjà dépouillée d'un certain nombre d'électrons périphériques, il ressort de nos distributions à deux ou trois lacunes qu'elle se solde, en moyenne, par une ionisation moins prononcée (environ deux fois moins), laquelle s'ajoute à la charge initiale. Ainsi, pour les atomes $^{223}\text{Ra}^{n+}$ par exemple, nous constatons que la charge moyenne est 13 pour le premier processus d'ionisation et qu'elle passe respectivement à 20 et à 25 pour les deux suivants; la deuxième ionisation n'apporte donc que 7 charges de plus, et la troisième, seulement 5 de plus. Cet accroissement de plus en plus lent de la charge moyenne s'explique par la modification progressive de la configuration électronique de l'ion radium (Tableau IX) : la deuxième réorganisation débute dans un atome dont la couronne ne contient plus, en moyenne, d'électrons P et Q, et la troisième se propage en cascade jusqu'aux sous-couches $O_{I, II, III}$ seulement (les sous-couches plus externes ayant été vidées, en moyenne, par les deux ionisations précédentes). La même remarque s'applique aux atomes Tl, Rn et Np.

Z	couche sous-couche	K	L	M	N	5s	O 5p	5d	5f	6s	P 6p	6d	Q 7s
81	Tl	2	8	18	32	2	6	10		2	1		
86	Rn	2	8	18	32	2	6	10		2	6		
88	Ra	2	8	18	32	2	6	10		2	6		2
93	Np	2	8	18	32	2	6	10	4	2	6	1	2

Tableau IX - Configuration électronique de quelques atomes lourds neutres.

On déduit du tableau IX que les distributions à une et deux lacunes, pour $85 < Z < 95$, sont constituées d'atomes dont les couches K, L, M et N sont pleines; pour obtenir un atome dont le cortège contienne moins de 60 électrons, il faut faire intervenir au moins trois ionisations primaires, en couche L, successives.

CONCLUSION

Le travail qui vient d'être exposé montre qu'il est possible de faire la spectrométrie de charge des émetteurs α lourds, par une méthode de temps de vol. Le domaine couvert s'étend de la charge zéro (souvent seulement estimée dans d'autres méthodes) à la charge 40 .

Le rôle, dans le processus d'ionisation des atomes de recul, de lacunes créées par conversion interne après la désintégration α (α de structure fine), a pu être précisé, grâce à l'enregistrement bi-paramétrique de spectres de charges en fonction de l'énergie α : les charges élevées résultent de la réorganisation du cortège, déclenchée par l'apparition d'une lacune en couche profonde, et non de la désintégration α elle-même.

Nous avons réussi à déterminer la charge moyenne et la distribution de charges, non seulement lorsque la réorganisation du cortège avait lieu dans un atome de recul neutre, mais encore, lorsqu'elle avait lieu dans un atome déjà ionisé par une et même deux réorganisations antérieures.

Nous avons montré que la charge moyenne, observée dans les distributions à une, deux ou trois lacunes primaires, croît lentement avec le numéro atomique et dépend de la profondeur des lacunes.

Comme la distribution totale de charges est très sensible au nombre de transitions converties qui surviennent après une désintégration α , nous avons pu, dans un cas particulier (^{219}Rn), confirmer l'existence d'une transition de basse énergie (4,4 keV) difficilement visible par les méthodes usuelles de spectrométrie nucléaire.

Cette étude a mis également en évidence la grande probabilité d'ébranlement des couches atomiques externes, au cours d'une désintégration α : l'atome descendant a, en moyenne, trois électrons de moins que l'atome parent.

Enfin, nous avons montré que la spectrométrie de charge n'est pas limitée à la seule mesure des charges; elle permet aussi d'aborder avec succès divers problèmes liés à l'existence de ces charges.

B I B L I O G R A P H I E

- Au 25 - AUGER (P.), J. Phys. 1925, 6, 205.
- Ba 54 - BARNETT (C.F.), EVANS (G.E.) et STIER (P.M.), Rev. Sc. Instr., 1954, 25, 1112.
- Ba 61 - BASTIN-SCOFFIER (G.), Thèse, Paris, 1961.
- Ba 63 - BAHCALL (J.N.), Phys. Rev., 1963, 129 , 2683.
- Ba 64 - BASTIN-SCOFFIER (G.), LEANG (C.F.) et WALEN (R.J.), C.R. Acad. Sc. 1964, série B, 258 , 6397.
- Be 53 - BENOIST-GUEUTAL (P.), Thèse, Paris, 1952; Ann. Phys. 1953, 8, 593.
- Be 57 - BETHE (H.A.) et SALPETER (E.E.), "Quantum Mechanics of One-and two-électron atoms", Academic Press, New York, 1957.
- Br 67 - BRIANÇON (C.), VALADARES (M.) et WALEN (R.J.), C.R. Acad. Sc. 1967, série B, 265, 1496.
- Br 68 - BRIANÇON (C.), LEANG (C.F.) et WALEN (R.J.), C.R. Acad. Sc. 1968, série B, 266, 1533.
- C 63 - CARLSON (T.A.), Phys. Rev. 1963 : 130, 2361; 131, 676.
- C 65 - CARLSON (T.A.) et KRAUSE (M.O.). Phys. Rev. Let. 1965, 14, 390.
- C 66 - CARLSON (T.A.) et KRAUSE (M.O.), Phys. Rev. Let. 1966, 17, 1079.
- Ca 33 - CAUCHOIS (Y.), Thèse, Paris, 1933; Ann. Phys. 1934, 1, 215.
- Ca 62 - CARLSON (T.A.) et WHITE (R.M.), J. Chem. Phys. 1962, 36, 2883; 1963, 38, 2930.
- Ca 63 - CARLSON (T.A.), PLEASANTON (F.) et JOHNSON (C.H.), Phys. Rev. 1963, 129, 2220.
- Ca 65 - CARLSON (T.A.) et KRAUSE (M.O.), Phys. Rev., 1965, 137, A 1655.
- Ca 66 - CARLSON (T.A.) et WHITE (R.M.), J. Chem. Phys., 1966, 44, 4510.
- Ca 68 - CARLSON (T.A.), NESTOR (C.W.), TUCKER (T.C.) et MALIK (F.B.), Phys. Rev. 1968, 169, 27.
- Can 65 - CANO (G.L.) et DRESSEL (R.W.), Phys. Rev., 1965, 139, A 1883.
- Can 68 - CANO (G.L.), Phys. Rev. 1968, 169, 2773.
- Ci 65 - CIOCCHETTI (G.) et MOLINARI (R.), Nuovo Cim., 1965, 40 B, 69.
- Co 35 - COSTER (D.) et KRONIG (R. de L.), Physica, 1935, 2, 13.
- Co 42 - COOPER (E.P.), Phys. Rev., 1942. 61, 1.
- Co 66 - COOPER (J.A.), HOLLANDER (J.M.) et RASMUSSEN (J.O.), in "Internal Conversion Processes", Hamilton (J.H.) éd., Academic Press, New York, 1966, p. 555.
- DeW 67 - De WIECLAWIK (W.) et PERRIN (N.). Colloque sur les noyaux moyens et lourds. Bordeaux, 1967; J. Phys. 1968, 29, C1-104.

- DeW 68 - De WIECLAWIK (W.), C.R. Acad. Sc., 1968, série B, 266, 577.
- DeW 69 - De WIECLAWIK (W.), C.R. Acad. Sc., 1969, série B, 268, 1268.
- Du 61 - DUQUESNE (M.), Thèse, Paris, 1956; Ann. Phys. 1961, 643.
- Er 68 - ERMAN (P.), SIGFRIDSSON (B.), CARLSON (T.A.) et FRANSSON (K.), Nucl. Phys., 1968, A 112, 117.
- Fe 65 - FEINBERG (E.L.), Yadern. Fiz., 1965, 1, 612; Transl. J. Nucl. Phys. USSR, 1, 438.
- Fl 60 - FLAMM (E.), Ph. D. Thesis, Berkeley, 1960, UCRL - 9325.
- Ge 68 - GELLETLY (W.) et GEIGER (J.S.), XVIIIème Conf. ann. de Spectr. Nucl., Riga, USSR, 1968, 25 janv-2 fév.
- Go 37 - GOLDSTEIN (L.), J. Phys., 1937, {7}, 8, 316.
- Gr 56a - GRARD (F.), C.R. 1956, 243, 777.
- Gr 56b - GRARD (F.), Bull. Acad. Roy. Belg., Cl. Sci., 1956, 42, 790.
- Gr 57 - GREEN (A.E.S.), Phys. Rev., 1957, 107, 1646.
- Gr 58 - GRARD (F.), Mem. Publ. Soc. Arts Lettres Hainault (Belg.), 1958, 72, 29.
- Gu 66 - GUNTER (K.C.K.), ASARO (F.) et HELMHOLZ (A.C.), Phys. Rev. Let. 1966, 16, 362.
- Gu 68 - GUNTER (K.C.K.), Ph. D. Thesis, Berkeley, 1968, UCRL - 18 313.
- Ha 56 - HAGSTRUM (H.D.), Phys. Rev. 1954, 96, 325; 1956, 104, 672.
- Ha 58 - HAUSER (U.) et KERLER (W.), Rev. Sci. Instr. 1958, 29, 380.
- Ha 67 - HAGER (R.S.) et SELTZER (E.C.), 1967, Caltech Report, CALT-63-60.
- Hu 66 - CARLSON (T.A.), HUNT (W.E.) et KRAUSE (M.O.), Phys. Rev. 1966, 151, 41.
- Jo 34 - JOLIOT (F.), J. Phys. Rad. 1934, {7}, 5, 219.
- Kr 64 - KRAUSE (M.O.), VESTAL (M.L.), JOHNSTON (W.H.) et CARLSON (T.A.), Phys. Rev. 1964, 133, A 385.
- Kr 66 - KRAUSE (M.O.) et CARLSON (T.A.), Phys. Rev. 1966, 149, 52.
- Kr 67 - KRAUSE (M.O.) et CARLSON (T.A.), Phys. Rev. 1967, 158, 18.
- Le 55 - LEVINGER (J.S.), Phys. Rev., 1953, 90, 11; J. Phys. Rad. 1955, 16, 556.
- Le 66 - LEDERER (C.M.), POGGENBURG (J.K.), ASARO (F.), RASMUSSEN (J.O.) et PERLMAN (I.), Nucl. Phys. 1966, 84, 481.
- Ma 10 - MAKOWER (W.) et EVANS (E.S.), Phil. Mag., 1910, {6}, 20, 882.
- McG 32 - Mc GEE (J.D.), Phil. Mag., 1932, {7}, 13, 1.
- Mi 41 - MIGDAL (A.), J. Phys. (USSR), 1941, 4, 449.
- Mu 31 - MUND (W.), CAPRON (P.) et JODOGNE (J.), Bul. Soc. Chim. Belg. 1931, 40, 35.
- Ol 55 - OLLENDORFF (F.), "Elektronik des Einzel elektrons", Springer-Verlag, Wien, 1955.

- Pa 59 - PARRAT (L.G.), Rev. Mod. Phys., 1959, 31, 616.
- Pa 60 - PARILIS (E.S.) et KISHINEVSKII, Sov. Phys. Solid. State, 1960, 3, 885.
- Pe 53 - PERLMAN (M.L.) et MISKEL (J.A.), Phys. Rev., 1953, 91, 899.
- Pe 58 - PERRIN (N.), Thèse, Paris, 1958; Ann. Phys. 1960, 1, 71.
- Pe 66 - PERRIN (N.) et De WIECLAWIK (W.), C.R. Acad. Sc., 1966, série B, 262, 511.
- Pe 67 - PERRIN (N.) et De WIECLAWIK (W.), Izv. Akad. Nauk, SSSR, 1967, ser. Fiz., 31, 80; Transl. Bulletin, 31, 86.
- Pl 57 - PLEASANTON (F.) et SNELL (A.H.), Proc. Roy. Soc. (London), 1957, A241, 141.
- Ru 10 - RUSS (S.) et MAKOWER (W.), Phil. Mag., 1910, {6}, 20, 875.
- Ru 55 - RUBENSTEIN (R.A.) et SNYDER (J.N.), Phys. Rev., 1955, 99, 189.
- Ru 63 - RUBINSON (W.), Phys. Rev., 1963, 130, 2011.
- S 55 - SNELL (A.H.) et PLEASANTON (F.), Phys. Rev., 1955, 97, 246.
- S 57 - SNELL (A.H.) et PLEASANTON (F.), Phys. Rev. 1957, 107, 740.
- S 58 - SNELL (A.H.) et PLEASANTON (F.), J. Phys. Chem., 1958, 62, 1377.
- Sc 53 - SCHWARTZ (H.M.), J. Chem. Phys., 1953, 21, 45.
- Sc 55 - SCHWARTZ (H.M.), Phys. Rev., 1955, 100, 135.
- Sc 66 - SCHRAM (B.L.), BOERBOOM (A.J.H.), KLEINE (W.) et KISTEMAKER (J.), Physica, 1966, 32, 749.
- Se 65 - SEVIER (K.D.), Arkiv Fysik, 1965, 28, 397.
- Sn 55 - SNELL (A.H.) et PLEASANTON (F.), Phys. Rev., 1955, 100, 1396.
- Sn 56 - SNELL (A.H.) et PLEASANTON (F.), Phys. Rev., 1956, 102, 1419.
- Sn 57 - SNELL (A.H.) et PLEASANTON (F.), J. Inorg. Nucl. Chem., 1957, 5, 112.
- Sn 58 - SNELL (A.H.) et PLEASANTON (F.), Phys. Rev. 1958, 111, 1338.
- Sn 59 - SNELL (A.H.), PLEASANTON (F.) et NEED (J.L.), Phys. Rev. 1959, 116, 1548.
- Sn 65 - SNELL (A.H.), in " α, β, γ Ray Spectroscopy", Siegbahn (K.) éd., Amsterdam, 1965, 1545.
- St 67 - STEPHAS (P.) et CRASEMANN (B.), Phys. Rev., 1967, 164, 1509.
- Sz 65 - SZUCS (S.) et DELFOSSE (J.M.), Phys. Rev. Let., 1965, 15, 163.
- Te 51 - TEILLAC (J.), Thèse, Paris, 1951; Ann. Phys. 1952, 7, 396.
- Va 40 - VALADARES (M.), Ricerca Scientifica, 1940, 11, 270.
- Va 66 - VALADARES (M.), WALEN (R.J.) et BRIANÇON (C.), C.R. Acad. Sc., 1966, série B, 263, 313.
- Vi 67 - VIEU (C.), BRIANÇON (C.), BASTIN-SCOFFIER (G.), LEANG (F.C.), TREHERNE (J.) et WALEN (R.J.), Izv. Akad. Nauk, SSSR, 1967, ser. Fiz., 31, 85; Transl. Bulletin, 31, 90.

- Wa 15 - WALMSLEY (H.P.) et MAKOWER (W.), Phil. Mag., 1915, {6}, 29, 253.
- Wa 62 - WALLEN (R.J.), NEDOVESOV (V.) et BASTIN-SCOFFIER (G.), Nucl. Phys. 1962, 35, 232.
- Wa 66a - WASTON (R.L.), BOWMAN (H.R.), THOMPSON (S.G.) et RASMUSSEN (J.O.), in "Internal Conversion Processes", Hamilton (J.H.) éd., Academic Press, New York, 1966, 423.
- Wa 66b - WATSON (R.L.). Ph. D. Thesis, Berkeley, 1966, UCRL - 16798.
- Wa 67 - WATSON (R.L.) et RASMUSSEN (J.O.), J. Chem. Phys., 1967, 47, 778.
- We 15 - WERTENSTEIN (L.), C.R. Acad. Sc., 1915, 161, 696.
- We 66 - WEINER (R.M.), Phys. Rev., 1966, 144, 127.
- Wi 52 - WINTHER (A.), Dan. Mat. Fys. Medd., 1952, 27, n° 2.
- Wi 55 - WINTHER (A.), J. Phys. Rad., 1955, 16, 564.
- Wi 64 - WILLIAMS (C.W.) et BIGGERSTAFF (J.A.), Nucl. Instr. Meth. 1964, 25, 370 .
- Wo 55 - WOLFSBERG (M.) et PERLMAN (M.L.), Phys. Rev. 1955, 99, 1833.
- Ya 66 - YAMAZAKI (T.) et HOLLANDER (J.M.), Nucl. Phys. 1966, 84, 505.

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Vu et approuvé :

PRÉSENTÉ le 19 JUIN 1969.

Le Doyen de la Faculté des Sciences,



G. Poitou

G. POITOU.

V. &

Les Recteurs des Universités :

Les Recteurs de l'Académie
des Sciences,

